

SÉRIE A, N°

N° D'ORDRE : 837

THÈSE

PRÉSENTÉE

AU CENTRE D'ORSAY, UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

par

Jean-Pierre TARAN



THÈSE : Distorsions des impulsions optiques intenses dans les matériaux non-linéaires.

Soutenue le 12 juillet 1971 devant la Commission d'examen

MM. J. DUCUING

Président

F. ABELÈS

P. LALLEMAND

E. COURTENS

} Examineurs

O.N.E.R.A.

29, Avenue de la Division Leclerc,
92 CHATILLON

1971

THÈSE

PRÉSENTÉE

AU CENTRE D'ORSAY, UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

par

Jean-Pierre TARAN



THÈSE : Distorsions des impulsions optiques intenses dans les matériaux non-linéaires.

Soutenue le 12 juillet 1971 devant la Commission d'examen

MM. J. DUCUING

Président

F. ABELÈS

P. LALLEMAND

E. COURTENS

} Examineurs

O. N. E. R. A.

29, Avenue de la Division Leclerc,
92 CHATILLON

1971



REMERCIEMENTS

C'est à la bienveillance de Monsieur le Professeur Paul GERMAIN, puis de Monsieur le Professeur Raymond CASTAING, successivement Directeurs Généraux de l'O.N.E.R.A., que je dois d'avoir pu effectuer le stage de deux ans aux Etats-Unis au cours duquel cette étude a été entreprise. Je les en remercie avec une profonde reconnaissance.

Je remercie également la D.G.R.S.T. pour la bourse de stage complémentaire qu'elle m'a accordée à cette occasion.

Monsieur Joseph TAILLET, Directeur Scientifique de la Physique Générale à l'O.N.E.R.A. est à l'origine de mon stage aux Etats-Unis. Son appui et l'intérêt qu'il a porté à ce travail me furent extrêmement précieux. Qu'il en soit ici chaleureusement remercié.

Je voue une gratitude particulière à Monsieur le Professeur Albert ARNULF pour l'assistance et l'aide qu'il m'a prodiguées tout au long des études qui ont abouti à ce travail. Monsieur Claude VERET, Chef de la division d'Optique de l'O.N.E.R.A., m'a apporté un soutien et une aide précieuse au cours du stage et pendant la rédaction de la thèse. Que l'un et l'autre veuillent bien trouver ici l'expression de ma reconnaissance.

Monsieur le Professeur Hermann HAUS au M.I.T., puis Monsieur le Professeur Charles TOWNES à l'Université de Californie de Berkeley, m'ont fait l'honneur de m'accepter au sein de leurs groupes respectifs. C'est à eux que je dois d'avoir pu entamer et mener à bien ces recherches ; je leur en suis profondément reconnaissant.

Mes amis le Professeur Kenneth GUSTAFSON, le Docteur Paul KELLEY et le Docteur Marguerite DENARIEZ-ROBERGE ont eu la bonté de m'associer à leurs recherches. Leur collaboration et leurs conseils au cours de ces études furent extrêmement stimulants. Qu'ils trouvent ici l'expression de ma sincère amitié et de ma reconnaissance.

Monsieur le Professeur Jacques DUCUING m'a guidé dans toutes les phases de la préparation de cette thèse et m'a fourni une aide précieuse au cours de la rédaction ; il m'a en outre fait l'honneur d'accepter la présidence du jury d'examen. Qu'il en soit ici vivement remercié, ainsi que Monsieur le Professeur Florent ABELÈS, et Messieurs Eric COURTENS et Pierre LALLEMAND qui ont bien voulu accepter d'être membres de ce jury.

Je remercie d'autre part Monsieur Eric COURTENS, avec qui des discussions fructueuses ont permis d'éclaircir certains points de ce travail.

Mes amis de la Division d'Optique de l'O.N.E.R.A. et du Laboratoire d'Optique quantitative d'Orsay m'ont apporté un soutien constant. Qu'ils trouvent tous ici l'expression de ma sincère amitié.

Je remercie enfin ma femme EVELINE dont le dévouement et la patience sont venus à bout de la frappe de ce texte.



TABLE DES MATIÈRES

	Pages
RÉSUMÉ _____	2
I - INTRODUCTION _____	3
II - ÉQUATIONS GÉNÉRALES _____	9
II,1. Equation de propagation d'une impulsion optique dans un milieu non-linéaire et dispersif _____	9
II,2. Equations des matériaux _____	15
II,2.1. Effet Kerr _____	15
II,2.2. Rectification optique _____	16
III - CALCULS DÉTAILLÉS ET RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DANS LES LIQUIDES DE KERR _____	17
III,1. Intégration des équations aux dérivées partielles _____	17
III,1.1. en l'absence de relaxation et de dispersion _____	17
III,1.2. Influence de la relaxation _____	21
III,1.3. Résultats numériques _____	22
III,2. Etude expérimentale des filaments à l'aide de la modulation de phase _____	26
III,2.1. Structure et durée des impulsions _____	26
III,2.2. Dépendance linéaire de la self-modulation en fonction de la distance : vérification expérimentale et implications _____	27
III,2.3. Filaments en impulsions brèves _____	31
III,3. Conclusion _____	33
III,3.1. Durée des filaments _____	33
III,3.2. Processus moléculaires _____	34
III,3.3. Dynamique de la propagation _____	35
IV - DISTORSION D'UNE IMPULSION BRÈVE DANS LES MATÉRIAUX ÉLECTROOPTIQUES _____	37
IV,1. Cas $v_s \neq v_g$ _____	39
IV,1.1. Champ rectifié _____	39
IV,1.2. Perturbations apportées à l'impulsion laser _____	43
IV,2. Cas $v_s \approx v_g$ _____	45
IV,2.1. Champ rectifié _____	45
IV,2.2. Perturbations apportées à l'impulsion laser _____	48
IV,3. Considérations expérimentales _____	50
APPENDICE A _____	53
APPENDICE B _____	58
APPENDICE C _____	61
RÉFÉRENCES _____	65



DISTORSION DES IMPULSIONS OPTIQUES INTENSES DANS LES MATÉRIAUX NON-LINÉAIRES

par

Jean-Pierre TARAN

RÉSUMÉ

L'étalement spectral subi par des impulsions optiques intenses se propageant dans des milieux dont l'indice dépend de l'intensité est étudié. Les deux cas importants des liquides de Kerr et des cristaux électrooptiques sont considérés. Les liquides de Kerr perturbent directement la propagation par le changement d'indice induit ; par contre, les cristaux électrooptiques conduisent à un processus en deux étapes : un champ électrique rectifié est d'abord créé, qui réagit ensuite sur l'impulsion optique par effet Pockels.

Ces phénomènes communiquent aux impulsions optiques des caractéristiques spectrales particulières. Les spectres obtenus numériquement dans le cas de l'effet Kerr sont semblables aux spectres des filaments auto-guidés observés dans le CS_2 et d'autres liquides de Kerr. La comparaison des résultats expérimentaux avec les calculs théoriques renseigne sur la durée des filaments et leur distance de propagation, ainsi que sur les mécanismes moléculaires.

Bien qu'aucun résultat expérimental n'ait été obtenu jusqu'à maintenant, des étalements spectraux semblables doivent être produits dans les cristaux électrooptiques. Ces spectres doivent présenter des caractéristiques originales, notamment dans le cas de l'adaptation des vitesses de groupe.

En appendice est esquissée une extension du traitement au cas de la génération du second harmonique en l'absence d'adaptation des vitesses de phase.

Descripteurs (thésaurus CEDOCAR) : Cellules Kerr - Electrooptique - Transmission lumière - Déformation - Spectres - Indice réfraction - Impulsions lumineuses.



DISTORTION OF INTENSE OPTICAL PULSES IN NONLINEAR MATERIALS

SUMMARY

The spectral broadening associated with intense light pulses propagating through media with an intensity-dependent index of refraction is studied. The two important cases of Kerr liquids and electrooptic crystals are considered. Kerr liquids will perturb the propagation through a direct induced index change ; but electrooptic crystals lead to a two-step process, whereby a rectified field is first generated, which in turn reacts back onto the optical pulse via the Pockels effect.

These will communicate characteristic spectral broadening to the optical pulses. Typical computed spectra pertaining to the Kerr effect are verified to match observed spectra of small-scale self-trapped filaments in CS_2 and other Kerr liquids. Comparison of the experimental results with theoretical calculations yields information on filament duration and propagation distance, and molecular processes.

Although no experimental evidence has been obtained so far, similar spectral spreads should be produced in electrooptic crystals. These spectra should exhibit novel features, particularly in the case of group velocity matching.

A brief extension of the approach to the case of mismatched second harmonic generation is outlined in an appendix.

Descriptors (NASA thesaurus) : Kerr electrooptical effect - Electro-optics - Spectrum analysis - Pulsed lasers - Birefringence - Light transmission - Distortion.

I - INTRODUCTION

Les propriétés non-linéaires des relations constitutives de Maxwell sont connues depuis longtemps. Que ce soit en basse fréquence dans les milieux ferromagnétiques, ou en micro-ondes dans les plasmas par exemple, il était courant de considérer les perméabilités magnétiques et les constantes diélectriques comme fonction des champs électriques et magnétiques.

La mise en évidence de tels effets dans le domaine optique dut attendre l'avènement des lasers. Bien que cette démonstration fût théoriquement possible avec les sources incohérentes précédemment disponibles, l'augmentation considérable de brillance permise par les lasers a porté ces phénomènes non-linéaires à un niveau d'intensité aisément décelable. En 1961, **Franken et coll** [1] furent les premiers à convertir partiellement en deuxième harmonique un faisceau de laser à rubis par passage à travers une lame de quartz. Leurs expériences marquaient le départ d'une exploration systématique des non-linéarités des matériaux, qui vit à ses débuts la démonstration de la rectification optique par **Bass et coll** [2] et de l'effet Raman stimulé par **Woodbury et Ng'** [3] et **Eckart et coll** [4]. Notons aussi un certain nombre d'autres interactions importantes : la conversion paramétrique, d'abord discutée par **Kroll** [5], puis observée par **Chiao et coll** [6] (avec l'effet Brillouin stimulé dans les solides) et **Wang et Racette** [7], et pour les effets du 3^e ordre, la génération de l'harmonique 3 (**Terhune et coll** [8]), l'absorption à deux photons (**Kaiser et Garrett** [9]), l'effet Kerr optique (**Gires et Mayer** [10]).

Cette conversion d'énergie lumineuse dans des modes de fréquence différente a été abordée au début comme un phénomène stationnaire [11] ; on peut en effet admettre qu'en général le régime permanent s'établit en un temps court, très inférieur à la durée d'une impulsion de laser déclenché (10^{-8} secondes). Ceci est plus particulièrement vrai dans le cas où n'interagissent que des modes optiques. Par contre, quand une onde acoustique est mise en cause comme dans le cas de l'effet Brillouin stimulé, il peut devenir crucial de tenir compte du temps fini nécessaire à sa croissance. En 1965, **Kroll** [12] a analysé le régime transitoire en diffusion Brillouin stimulée, et de nombreux travaux expérimentaux ont depuis été effectués sur les gains transitoires dans les diffusions Brillouin et Raman stimulées [13-19]. Pour des raisons analogues, la saturation qui peut se manifester au cours de ces mêmes diffusions stimulées [20-21] doit être considérée comme dépendant du temps. Tous ces phénomènes, qui ont pu être mis en évidence et analysés expérimentalement avec des impulsions nanoseconde émises par des lasers déclenchés, deviennent très importants avec les impulsions picoseconde de lasers à modes couplés : le gain en puissance crête est de deux ordres de grandeur et les durées typiques de 10^{-12} secondes qu'ont les impulsions deviennent comparables ou inférieures à certains temps de réponse des matériaux comme l'électrostriction, l'effet Kerr d'orientation, les vibrations de liaisons interatomiques.

Un exemple particulièrement intéressant est celui de l'effet Kerr d'orientation, car les susceptibilités mises en cause sont très importantes et l'onde excitatrice peut être considérablement perturbée sur de faibles distances de propagation ; **Rosen** [98], **Joenk et Landauer** [99] et **De Martini, Townes, Gustafson et Kelley** [22] furent les premiers à discuter les problèmes de distorsion d'enveloppe des impulsions optiques dans les liquides de Kerr. Le mécanisme conduisant à cette distorsion est le suivant : une impulsion électromagnétique qui se propage dans un milieu dont l'indice dépend de l'intensité -comme les liquides de Kerr- induit au sein de ce milieu un changement d'indice non-linéaire ; à son tour, le changement d'indice perturbe l'impulsion, dont la phase et l'enveloppe sont déformées. En particulier, un choc se développe sur le flanc arrière, de même qu'un choc apparaît sur le front de montée d'une onde sonore. En règle générale, d'ailleurs, le signe de la non-linéarité détermine la position du choc ; si l'indice augmente, la vitesse du sommet de l'impulsion diminue relativement aux pieds, le pied arrière rattrape le sommet, et le choc se forme sur le flanc de descente ; si l'indice diminue, le choc apparaît sur le flanc de montée.

Ces phénomènes ne sont pas nouveaux. Les chocs électromagnétiques en microondes ont déjà été discutés [100-101], **Salinger** [102] ayant le premier montré le parallèle entre les domaines de l'aérodynamique [103] et de l'électromagnétisme. L'attention s'est surtout portée sur la propagation dans les cristaux ferroélectriques et les lignes de transmission [100-101]. Certains de ces auteurs [100] ont montré l'importance de la dispersion, qui empêche la formation d'un choc sur un seul cycle de la porteuse. Dans le domaine optique, des travaux similaires sur les chocs ont été accomplis par **Ikuta et Taniuti** [104] et **Rosen** [99] ; **Broer** [105] inclut dans ses calculs le rôle de la dispersion. Mais c'est surtout à **De Martini et coll** [22] que l'on doit une étude approfondie de ces problèmes, englobant la relaxation du milieu. Ils montrèrent en particulier, avec **Joenk et Landauer** [99], le rôle important joué par la phase de l'impulsion (self-phase modulation).

En effet, si ce phénomène de modulation de phase est suffisamment marqué, un étalement appréciable du spectre peut se produire [23-25]. Un tel élargissement spectral, déjà remarqué au cours de certaines études d'effet Raman stimulé [26] est particulièrement notable pour les filaments autoguidés [25, 27-31]. Les filaments

sont les traces brillantes de quelques microns de diamètre et plusieurs centimètres de long observées par côté dans les liquides de Kerr. Ce mode de propagation est généralement interprété comme le résultat de l'équilibre entre les forces de diffraction et l'effet de focalisation dû au gradient radial d'indice non-linéaire (voir chapitre III).

Ces travaux furent repris par **Gustafson, Taran, Haus, Lifstiz et Kelley** [55], mais axés vers une comparaison serrée avec les résultats expérimentaux. Il en ressort le peu d'influence jouée par la dispersion dans les cas pratiques, car le temps de relaxation de la non-linéarité est long devant la période optique. Peu après, **Gustafson, Taran, Kelley et Chiao** [106] traitaient de façon similaire la propagation dans les matériaux électrooptiques, qui met en jeu un processus en deux étapes : la rectification optique engendre un champ électrique quasi-statique qui à son tour réagit sur l'impulsion laser par effet Pockels.

Ces publications constituent une partie du présent travail ; en outre, un certain nombre de résultats expérimentaux sont exposés.

ONDES ET POLARISATIONS INDUITES DANS LES MATÉRIAUX NON-LINÉAIRES

Pour une description macroscopique des phénomènes, nous partirons du système d'équations de Maxwell, qui régit la propagation des ondes de fréquence ω distinctes, et de la relation de définition de la polarisation induite au sein du milieu, qui est responsable du couplage entre les différentes ondes.

Nous supposerons que les matériaux étudiés sont dépourvus de charges électriques et qu'ils ne sont pas magnétiques. Les composantes électrique $\underline{E}$ et magnétique $\underline{H}$ du champ électromagnétique obéissent aux équations de Maxwell (système électrostatique) :

$$(I.1a) \quad \nabla_{\perp} \underline{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \underline{H}$$

$$(I.1b) \quad \nabla_{\perp} \underline{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \underline{D}$$

$$(I.1c) \quad \nabla \cdot \underline{D} = 0$$

$$(I.1d) \quad \nabla \cdot \underline{H} = 0 .$$

Nous aurons besoin par la suite de la transformée de Fourier en temps du champ électrique, définie comme suit :

$$\underline{E}(\underline{r}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \underline{E}(\underline{r}, \omega) e^{-i\omega t} d\omega .$$

Il existe des relations semblables pour l'induction et la polarisation.

Les équations de Maxwell se transposent directement :

$$(I.2a) \quad \nabla_{\perp} \underline{E}(\underline{r}, \omega) = \frac{i\omega}{c} \underline{H}(\underline{r}, \omega),$$

$$(I.2b) \quad \nabla_{\perp} \underline{H}(\underline{r}, \omega) = -\frac{i\omega}{c} \underline{D}(\underline{r}, \omega),$$

$$(I.2c) \quad \nabla \cdot \underline{D}(\underline{r}, \omega) = 0 ,$$

$$(I.2d) \quad \nabla \cdot \underline{H}(\underline{r}, \omega) = 0 ,$$

et conduisent à l'équation d'onde

$$(I.3) \quad \nabla_{\perp} \nabla_{\perp} \underline{E}(\underline{r}, \omega) = \frac{\omega^2}{c^2} \underline{D}(\underline{r}, \omega) .$$

L'induction électrique $\underline{D}$ se décompose suivant :

$$(I.4) \quad \underline{D}(\underline{r}, \omega) = \underline{\epsilon}(\underline{r}, \omega) + 4\pi \underline{P}(\underline{r}, \omega).$$

La polarisation $\underline{P}$ s'écrit de façon symbolique [11]

$$(I.5) \quad \underline{P} = \underline{\chi}^{(1)} \underline{E} + \underline{\chi}^{(2)} \underline{E}^2 + \underline{\chi}^{(3)} \underline{E}^3 + \dots$$

(I.3) s'écrit alors :

$$(I.6) \quad \nabla_{\perp} \nabla_{\perp} \underline{E}(\underline{r}, \omega) - \frac{\omega^2}{c^2} \underline{D}(\underline{r}, \omega) = 4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \underline{P}^{NLS}(\underline{r}, \omega),$$

où $\underline{D}(\underline{r}, \omega) = \underline{\epsilon} \underline{E}(\underline{r}, \omega)$ (avec $\underline{\epsilon} = 1 + 4\pi \underline{\chi}^{(1)}$ tenseur diélectrique linéaire) et où $\underline{P}^{NLS}(\underline{r}, \omega)$ est le terme source non-linéaire de la polarisation.

Supposant plusieurs ondes planes de fréquences distinctes ω_j présentes dans le matériau, cherchons maintenant les diverses contributions de $\underline{P}^{NLS}$. Chaque onde quasi monochromatique de fréquence porteuse ω_j , de longueur d'onde λ_j et de vecteur d'onde $\underline{k}_j$ ($|\underline{k}_j| = (2\pi/\lambda_j)$), est représentée par un champ électrique $\underline{E}_j(\underline{r}, t)$ qui peut être écrit sous la forme générale :

$$(I.7) \quad \underline{E}_j(\underline{r}, t) = \frac{1}{2} \left[\underline{E}_j(\underline{r}, t) e^{i(\underline{k}_j \cdot \underline{r} - \omega_j t)} + \underline{E}_j^*(\underline{r}, t) e^{-i(\underline{k}_j \cdot \underline{r} - \omega_j t)} \right],$$

où $\underline{E}_j(\underline{r}, t)$ est un vecteur complexe à variations lentes devant ω .

Explicitant alors dans la relation (I.5) le champ total $\underline{E}$ comme la somme des différents champs : $\underline{E} = \sum_j \underline{E}_j(\underline{r}, t)$, nous voyons apparaître des termes de polarisation de la forme :

$$(I.8) \quad \underline{P}^{NLS}(\underline{r}, t) = \frac{\chi^{(n)}}{2^n} (\ell_1 \omega_1, \dots, \ell_j \omega_j, \dots, \ell_n \omega_n) \prod_{j=1}^n \underline{E}_j^{\ell_j}(\underline{r}, t) e^{i \ell_j (\underline{k}_j \cdot \underline{r} - \omega_j t)}$$

où ℓ_j vaut ± 1 , et $\underline{E}_j^{\ell_j}(\underline{r}, t)$ est égal à $\underline{E}_j(\underline{r}, t)$ ou $\underline{E}_j^*(\underline{r}, t)$ suivant que $\ell_j = +1$ ou $\ell_j = -1$. Chaque terme $\underline{P}^{NLS}(\underline{r}, t)$, dont la transformée de Fourier $\underline{P}^{NLS}(\underline{r}, \omega_s)$ est un terme source pour une équation de type (I.6), représente un réseau spatial de dipôles oscillant à la fréquence $\omega_s = \sum_{j=1}^n \ell_j \omega_j$ et liés par une relation de phase (représentée par le terme de distribution spatiale

$$e^{i \underline{k}_s \cdot \underline{r}},$$

avec

$$\underline{k}_s = \sum_{j=1}^n \ell_j \underline{k}_j.$$

Dans le cas général, la polarisation donnée par la relation (I.8) est couplée à une onde progressive de fréquence ω_s et vecteur d'onde $\underline{k}_s'$. Les solutions self-consistantes pour les champs $\underline{E}_j(\underline{r}, t)$ qui représentent ces ondes peuvent être obtenues à l'aide des équations de Maxwell dans lesquelles les $\underline{P}^{NLS}$ sont prises comme termes source. Le couplage sera appréciable si $\Delta \underline{k} = \underline{k}_s' - \underline{k}_s$ est petit (condition dite de « phase matching » ou d'adaptation de phase).

Les effets des $\underline{P}^{NLS}$ sont classés suivant l'ordre du tenseur χ qui leur est associé.

(2)

Termes en χ

Leurs effets peuvent être mis en évidence dans les corps dépourvus d'inversion de symétrie ; on distingue :

1° - CONVERSION PARAMÉTRIQUE

C'est le cas le plus général, où deux ondes de fréquences ω_1 et ω_2 distinctes se combinent pour donner naissance à des ondes de fréquence somme et différence $\omega_1 + \omega_2$ et $\omega_1 - \omega_2$.

Les termes de polarisation sont :

$$(I.9) \quad \frac{1}{4} \chi_{\equiv}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \underline{\underline{E}}_1(r, t) \underline{\underline{E}}_2(r, t) e^{i[(\underline{k}_1 + \underline{k}_2) \cdot \underline{r} - (\omega_1 + \omega_2)t]} + c.c. \\ \frac{1}{4} \chi_{\equiv}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \underline{\underline{E}}_1(r, t) \underline{\underline{E}}_2^*(r, t) e^{i[(\underline{k}_1 - \underline{k}_2) \cdot \underline{r} - (\omega_1 - \omega_2)t]} + c.c.$$

Wang et Racette [7] ont obtenu dans le KDP l'amplification de la raie $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ du laser He Ne par l'harmonique 2 à $\lambda = 3470 \text{ \AA}$ d'une impulsion de laser à rubis déclenché. Plaçant un cristal de LiNbO_3 dans une cavité résonante, Giordmaine et Miller [32] ont obtenu une oscillation paramétrique dont la fréquence était accordable de 7300 Å à 19300 Å par choix de la température du cristal ; l'onde de pompe était fournie par l'harmonique 2 d'un laser au CaWO_4 dopé au néodyme.

Si ω_1 est une fréquence optique et ω_2 une fréquence micro-onde, des bandes latérales se trouvent créées sur la porteuse [33] ; inversement, deux faisceaux optiques de fréquences voisines peuvent donner naissance à des micro-ondes [34-35]. Prenant $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, on obtient les deux cas particuliers suivants :

2° - GÉNÉRATION DU SECOND HARMONIQUE (GSH)

$$(I.10) \quad \frac{1}{4} \chi_{\equiv}^{(2)}(\omega, \omega) \underline{\underline{E}}^2(r, t) e^{2i(\underline{k} \cdot \underline{r} - \omega t)} + c.c.$$

d'abord observée par Franken [1]. Peu après, Maker et coll [36] démontraient l'importance de l'adaptation de phase et obtenaient, avec Giordmaine [37], des conversions substantielles;

3° - RECTIFICATION OPTIQUE

$$(I.11) \quad \frac{1}{4} \chi_{\equiv}^{(2)}(\omega, -\omega) \underline{\underline{E}}(r, t) \underline{\underline{E}}^*(r, t) + c.c.$$

Un champ électrique statique apparaît dans le cristal. Cet effet, observé par Franken et coll [2] dans le KDP, peut être considéré comme l'inverse de l'effet Pockels ;

4° - EFFET POCKELS (ou EFFET LINÉAIRE ÉLECTROOPTIQUE)

$$(I.12) \quad \chi_{\equiv}^{(2)}(\omega, 0) \underline{\underline{E}}_s(r, t) \underline{\underline{E}}_\omega(r, t) e^{i(\underline{k} \cdot \underline{r} - \omega t)} + c.c.$$

Ici, un champ électrique réel quasi statique $\underline{\underline{E}}_s(r, t)$ modifie l'indice du matériau pour l'onde de fréquence ω . Nous ferons usage par la suite d'une relation qui lie $\chi_{\equiv}^{(2)}$ de rectification et d'effet Pockels, et qui découle des relations de symétrie intrinsèque [2, 38, 39] :

$$(I.13) \quad \chi_{\equiv}^{(2)}(\omega, -\omega) = \chi_{\equiv}^{(2)}(\omega, 0).$$

Termes en $\chi^{(3)}$

Ces termes sont présents dans tous les cristaux, y compris ceux ayant un centre de symétrie, ainsi que les liquides et les gaz. On distingue :

1° - EFFETS PARAMÉTRIQUES A 4 PHOTONS

$$\frac{1}{8} \chi_{\equiv}^{(3)}(\ell_1 \omega_1, \ell_2 \omega_2, \ell_3 \omega_3) \underline{\underline{E}}_1^{\ell_1}(r, t) \underline{\underline{E}}_2^{\ell_2}(r, t) \underline{\underline{E}}_3^{\ell_3}(r, t) e^{i(\underline{k}_s \cdot \underline{r} - \omega_s t)} + c.c.$$

où $\underline{k}_s = \ell_1 \underline{k}_1 + \ell_2 \underline{k}_2 + \ell_3 \underline{k}_3 \quad \text{et} \quad \omega_s = \ell_1 \omega_1 + \ell_2 \omega_2 + \ell_3 \omega_3$

sont le vecteur d'onde et la fréquence de l'onde de polarisation. Trois ondes se mélangent pour donner naissance à une quatrième. Il existe un certain nombre de cas particuliers importants :

2° - GÉNÉRATION DE L'HARMONIQUE 3 [8]

où l'on a $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega$; le terme qui lui est associé est :

$$\frac{1}{8} \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \underline{\underline{E}}^3(r, t) e^{3i(k \cdot r - \omega t)} + c.c.$$

Les considérations sur la GSH se transposent ; l'effet a été observé dans de nombreux matériaux, mais la polarisation et les rendements obtenus sont plus faibles en général.

Les effets importants qui suivent dépendent tous du terme en $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, -\omega_2)$. Suivant que l'on prend la partie réelle de la susceptibilité (qui correspond à un changement d'indice), ou sa partie imaginaire (qui correspond à une absorption), on distingue successivement :

3° - INDICE DÉPENDANT DE L'INTENSITÉ

$$\frac{1}{4} \Re_e \left[\chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, -\omega_2) \right] \underline{\underline{E}}_1(r, t) \underline{\underline{E}}_2(r, t) \underline{\underline{E}}_2^*(r, t) e^{i(k_1 \cdot r - \omega_1 t)} + c.c.$$

C'est l'effet Kerr quadratique ; l'indice du milieu pour l'onde de fréquence ω_1 est modifié par l'onde de fréquence ω_2 et il varie d'une quantité proportionnelle à l'intensité de l'onde ω_2 . Si l'on choisit $\omega_2 = 0$ on est en présence de l'effet Kerr quadratique bien connu, où l'indice est changé par un champ électrique continu.

Si l'interaction se produit dans un liquide, ce dernier peut être rendu biréfringent par le faisceau de fréquence ω_2 [10]. Dans le cas plus particulier où il existe une seule onde intense de fréquence ω , ($\omega_1 = \omega_2 = \omega$) celle-ci peut se perturber elle-même ; on assiste alors aux phénomènes d'autofocalisation, et d'autoguidage [40-41] ; cet effet est aussi responsable de la modulation de phase et de la distorsion d'enveloppe que nous nous proposons d'étudier.

La partie imaginaire de la susceptibilité correspond à un gain ou une absorption induits. Si $\omega_1 + \omega_2$ ou $\omega_1 - \omega_2$ sont en résonance avec un mode particulier du milieu (par exemple la vibration d'une liaison interatomique), l'effet sera plus prononcé. Ceci conduit aux effets suivants :

4° - EFFET RAMAN STIMULÉ

$$\frac{1}{4} \Im_m \left[\chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, -\omega_2) \right] \underline{\underline{E}}_1(r, t) \underline{\underline{E}}_2(r, t) \underline{\underline{E}}_2^*(r, t) e^{i(k_1 \cdot r - \omega_1 t)} + c.c.$$

Un photon de fréquence ω_2 est absorbé et un photon diffusé ω_1 est émis, la différence d'énergie étant absorbée ou fournie par le matériau sous la forme d'un quantum d'excitation de vibration ;

5° - DIFFUSION RAYLEIGH STIMULÉE

Celle-ci est formellement semblable à la diffusion Raman stimulée. Les fréquences ω_1 et ω_2 sont très voisines ; leur différence est égale à une fréquence de relaxation du milieu (au lieu d'une fréquence de résonance) ;

6° - ABSORPTION A 2 PHOTONS

Ceci se produit si c'est la somme $\omega_1 + \omega_2$ qui entre en résonance ; ici l'onde ω_1 est atténuée, un photon de fréquence ω_1 et un photon de fréquence ω_2 étant simultanément absorbés dans le milieu.

La théorie des perturbations indique que les $\chi^{(n)}$ décroissent en puissance successives de E/E_{at} , où E_{at} est le champ interatomique de liaison des électrons de valence. En général $E \ll E_{at}$, ce qui entraîne par exemple que les termes en $\chi^{(3)}$ sont très inférieurs à ceux en $\chi^{(2)}$. Une exception notable est celle de l'effet Kerr dans les liquides dont les molécules sont anisotropes. Ces molécules peuvent tourner et tendent à s'aligner, sous l'action du champ appliqué, dans la direction de polarisation de ce dernier, induisant une biréfringence au sein du liquide. Dans ces conditions, on observe

à la fréquence optique ω un changement d'indice de l'ordre de $2\pi\chi^{(3)}\epsilon^2$, tout a fait comparable à l'indice $n_0(\omega)$ dès qu'on approche de la saturation. Celle-ci intervient à des champs relativement faibles de 10^7 à 10^8 V/cm. Le $\chi^{(3)}$ est donc de 2 à 3 ordres de grandeurs supérieur aux autres $\chi^{(3)}$ de nature électronique ou ionique ; ses effets peuvent devenir comparables ou supérieurs à ceux des termes en $\chi^{(2)}$.

C'est la raison pour laquelle la modulation de phase, qui fera en partie l'objet de notre discussion, n'a pu jusqu'à présent être décelée que dans les liquides de Kerr. Le calcul montre qu'elle doit aussi conduire à des effets appréciables dans les cristaux électrooptiques moyennant certaines précautions d'ajustement des vitesses de groupe.

Le chapitre II établit les équations générales liées à la propagation d'impulsions laser intense et brèves dans les liquides de Kerr et les cristaux électrooptiques, le paragraphe II,1 ayant trait à la mise en forme des équations de Maxwell et le paragraphe II,2 étant consacré aux équations des matériaux.

Les calculs détaillés et les résultats relatifs aux liquides de Kerr sont exposés dans le chapitre III. Les calculs proprement dits fournissent des solutions théoriques approchées qui sont comparées aux solutions numériques exactes. En seconde partie, un certain nombre de résultats expérimentaux sur les filaments auto-guidés (self-trapped filaments) sont présentés : il s'avère en effet que, dans ces filaments, les conditions de propagation sont responsables d'étalements spectraux importants qui peuvent s'expliquer par le phénomène de modulation de phase. On en déduit notamment des renseignements sur l'ordre de grandeur des changements d'indice et les distances de propagation [42].

Des calculs théoriques sur la distorsion d'impulsions laser dans les matériaux électrooptiques [106] sont présentés dans le chapitre IV. Des spectres caractéristiques de modulation de phase sont donnés et certaines prédictions sont faites en ce qui concerne les possibilités de vérification expérimentale. Une situation particulièrement intéressante est celle où les vitesses de groupe optique et quasi-statique sont égales, conduisant à une interaction résonante ; l'effet devrait être facilement observable dans un cristal d'arséniure de gallium.



II - ÉQUATIONS GÉNÉRALES

II.1. Equation de propagation d'une impulsion optique dans un milieu non-linéaire et dispersif

Nous nous bornerons à considérer les matériaux doués des propriétés suivantes : rectification optique et effet Kerr. Nous cherchons à établir pour de tels matériaux les équations de Maxwell d'ondes planes relatives à une impulsion optique intense polarisée linéairement. Pour décrire convenablement la propagation, ces équations doivent tenir compte :

- des changements d'indice provoqués, soit directement par l'alignement des molécules s'il s'agit d'un liquide (effet Kerr), soit par le champ électrique quasi-statique qui est créé par le processus de rectification et réagit sur l'impulsion optique par effet Pockels s'il s'agit d'un matériau électro-optique. Ces changements d'indice se reflèteront dans les équations sous forme d'un terme source fonction de la distance et du temps, et pour lequel une expression sera donnée en seconde partie ;
- des propriétés de dispersion du matériau autour de la fréquence porteuse optique ω_0 ; nous verrons en effet que les changements d'indice sont responsables d'un étalement du spectre de l'impulsion, et il faudra tenir compte de ce que chaque composante spectrale possède une vitesse de phase distincte. Nous ferons cependant l'hypothèse simplificatrice que l'étalement spectral $\Delta\omega$ est petit devant ω_0 :

$$(II.1) \quad \Delta\omega \ll \omega_0.$$

Nous cherchons à ramener l'équation d'onde à une équation aux dérivées partielles du premier ordre. Nous supposons à cet effet que l'onde optique ne subit pas de réflexions dans le matériau, autrement dit que les changements d'indice induits par les diverses non-linéarités varient lentement en fonction de z :

$$\lambda \frac{\partial n}{\partial z} \ll 1.$$

Les calculs s'effectuent suivant les lignes esquissées par **Ducuing** et **Flytzanis** [43].

Nous supposons dans ce qui suit que l'induction $\underline{D}\omega_0(r, t)$ est portée par l'un des axes de l'ellipse des indices associée à la direction du vecteur d'onde $\underline{k}_0$. Dans ce cas, le champ électrique $\underline{E}\omega_0(r, t)$ peut se représenter comme le produit d'une fonction d'onde plane monochromatique solution de l'équation d'onde homogène par un terme d'amplitude complexe à variation lente devant la porteuse :

$$(II.2) \quad \begin{aligned} \underline{E}\omega_0(r, t) &= \frac{\hat{e}}{2} \left[\underline{E}(r, t) e^{i(\underline{k} \cdot \underline{r} - \omega_0 t)} + c.c. \right] \\ &= \underline{E}'\omega_0(r, t) + \underline{E}'\omega_0^*(r, t), \end{aligned}$$

où $\hat{e}$ est le vecteur unitaire dans la direction de polarisation. On sait que $\hat{e}$ est contenu dans le plan défini par $\underline{k}_0$ et $\underline{D}\omega_0(r, t)$. En principe, $\hat{e}$ n'est pas constant en raison de la diffraction et de l'interaction non-linéaire ; nous supposons que ces phénomènes ont une influence négligeable.

On déduit de la partie homogène de (I.6) :

$$(II.3) \quad \underline{k}_0 \wedge (\underline{k}_0 \wedge \hat{e}) + \frac{\omega_0^2}{c^2} \underline{E}\hat{e} = 0.$$

Des relations (I.1) découle l'équation d'onde :

$$(II.4) \quad \nabla_\perp \nabla_\perp \underline{E}\omega_0(r, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \underline{D}\omega_0(r, t) = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \underline{P}^{NL}\omega_0(r, t).$$

Ici, l'induction linéaire $\underline{D}\omega_0(r, t)$ ne contient que des termes de dispersion ; dans $\underline{P}^{NL}\omega_0(r, t)$ sont regroupées toutes les contributions de non-linéarité. $\underline{D}$ se décompose suivant une loi similaire à (II.2) :

$$(II.5) \quad \underline{D}^L \omega_o(\underline{r}, t) = \frac{1}{2} \left[\underline{D}^L(\underline{r}, t) e^{i(\underline{k}_o \cdot \underline{r} - \omega_o t)} + c.c. \right].$$

Nous écrivons de façon semblable :

$$(II.6) \quad \underline{P}^{NLS} \omega_o(\underline{r}, t) = \frac{1}{2} \left[\underline{P}'^{NLS}(\underline{r}, t) + \underline{P}'^{NLS*}(\underline{r}, t) \right].$$

Que nous considérons l'effet électrooptique ou l'effet Kerr, nous pouvons écrire de façon générale, en supposant la dispersion de non-linéarité négligeable :

$$\underline{P}'^{NLS} = \frac{1}{4\pi} \underline{\delta\epsilon}(\underline{r}, t) \hat{e} \hat{e} \mathcal{E}(\underline{r}, t) e^{i(\underline{k}_o \cdot \underline{r} - \omega_o t)};$$

dans le cas de l'effet électrooptique,

$$(II.7) \quad \underline{\delta\epsilon}(\underline{r}, t) = 8\pi \underline{\chi}^{(2)}(\omega, 0) \underline{E}_s(\underline{r}, t)$$

est le changement d'indice par effet Pockels en présence du champ rectifié engendré par l'impulsion optique ; on a par ailleurs :

$$(II.8) \quad \underline{\delta\epsilon}(\underline{r}, t) = 2\pi \underline{\chi}^{(3)}(\omega, -\omega, \omega) \hat{e} \hat{e} \mathcal{E}(\underline{r}, t) \mathcal{E}^*(\underline{r}, t)$$

si l'on s'intéresse à l'effet Kerr (dans l'hypothèse d'un temps de relaxation nul). Les $\underline{\delta\epsilon}$ sont des fonctions lentement variables de $\underline{r}$ et t .

Introduisant les transformées de Fourier en espace et temps du champ électrique :

$$\mathcal{E}(\underline{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d^3 \underline{Q} d\Omega \mathcal{E}(\underline{Q}, \Omega) e^{i(\underline{Q} \cdot \underline{r} - \Omega t)}$$

et de l'induction linéaire :

$$\underline{D}^L(\underline{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d^3 \underline{Q} d\Omega \mathcal{E}(\underline{Q}, \Omega) \underline{\epsilon}(\omega_o + \Omega) \hat{e} e^{i(\underline{Q} \cdot \underline{r} - \Omega t)},$$

nous pouvons réécrire l'équation d'onde (II.4) ; la multipliant scalairement par $\hat{e}$, on obtient pour chaque terme :

$$\begin{aligned} & \hat{e} \cdot \left[\nabla_{\perp} \nabla_{\perp} \hat{e} \mathcal{E}(\underline{r}, t) e^{i(\underline{k}_o \cdot \underline{r} - \omega_o t)} \right] \\ &= - \int d^3 \underline{Q} d\Omega \hat{e} \cdot \left\{ (\underline{k}_o + \underline{Q})_{\perp} \left[(\underline{k}_o + \underline{Q})_{\perp} \hat{e} \right] \mathcal{E}(\underline{Q}, \Omega) e^{i[(\underline{k}_o + \underline{Q}) \cdot \underline{r} - (\omega_o + \Omega)t]} \right\} \\ &= - \int d^3 \underline{Q} d\Omega \left[\hat{e} \cdot \underline{k}_o \wedge (\underline{k}_o \wedge \hat{e}) + 2(\hat{e} \cdot \underline{k}_o)(\hat{e} \cdot \underline{Q}) - 2\underline{k}_o \cdot \underline{Q} + (\hat{e} \cdot \underline{Q})^2 - \underline{Q} \cdot \underline{Q} \right] \\ & \quad \times \mathcal{E}(\underline{Q}, \Omega) e^{i[(\underline{k}_o + \underline{Q}) \cdot \underline{r} - (\omega_o + \Omega)t]} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \hat{e} \cdot \frac{\partial^2}{\partial t^2} \underline{\mathcal{E}}(r, t) &= - \int d^3 Q d\Omega (\omega_0 + \Omega)^2 \hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(\omega_0 + \Omega) \hat{e} \mathcal{E}(Q, \Omega) e^{i(Q \cdot r - \Omega t)} \\ &= - \int d^3 Q d\Omega \left[\omega_0^2 \hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(\omega_0) \hat{e} + \Omega \frac{d}{d\omega_0} [\omega_0^2 \hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(\omega_0) \hat{e}] + \frac{\Omega^2}{2} \frac{d^2}{d\omega_0^2} [\omega_0^2 \hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(\omega_0) \hat{e}] + \dots \right] \\ &\quad \times \mathcal{E}(Q, \Omega) e^{i(Q \cdot r - \Omega t)}. \end{aligned}$$

Dans l'hypothèse (II.1), nous ne retiendrons dans ce qui suit que les termes en Ω d'ordre inférieur ou égal à 2 et négligerons la dérivée seconde de l'amplitude de la polarisation $\underline{P}^{NL2}$. Compte tenu de (II.3), (II.4) devient :

$$\begin{aligned} &\int d^3 Q d\Omega \left\{ 2(\hat{e} \cdot \underline{k}_0)(\hat{e} \cdot \underline{Q}) - 2\underline{k}_0 \cdot \underline{Q} + (\hat{e} \cdot \underline{Q})^2 - \underline{Q} \cdot \underline{Q} + \frac{\Omega}{c^2} \frac{d}{d\omega_0} [\omega_0^2 \hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(\omega_0) \hat{e}] \right. \\ &\quad \left. + \frac{\Omega^2}{2c^2} \frac{d^2}{d\omega_0^2} [\omega_0^2 \hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(\omega_0) \hat{e}] \right\} \mathcal{E}(Q, \Omega) e^{i(Q \cdot r - \Omega t)} \\ &= - \frac{1}{c^2} (\omega_0^2 + 2i\omega_0 \frac{\partial}{\partial t}) [\hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(r, t) \hat{e} \mathcal{E}(r, t)]. \end{aligned}$$

Afin de parvenir à une équation différentielle en $\mathcal{E}(r, t)$, choisissons un système d'axes (fig. 1) tel que l'axe z soit perpendiculaire aux plans d'onde et que $\hat{e}$ soit dans le plan xz ; soit α l'angle de $\hat{e}$ avec l'axe x .

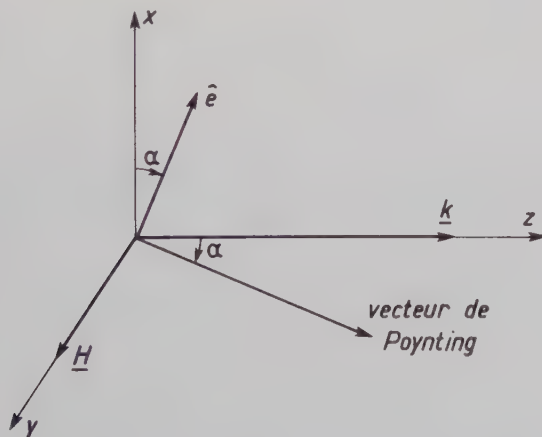


Fig. 1 - Système d'axes dans lequel s'effectue l'intégration de l'équation différentielle du champ optique.

Il vient :

$$\begin{aligned} &\left[\sin^2 \alpha \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \cos^2 \alpha \frac{\partial^2}{\partial z^2} - 2 \sin \alpha \cos \alpha \frac{\partial^2}{\partial x \partial z} - 2ik_0 \cos \alpha \left(\sin \alpha \frac{\partial}{\partial x} - \cos \alpha \frac{\partial}{\partial z} \right) \right. \\ &\quad \left. + i \cos^2 \alpha \left(\frac{dk_0}{d\omega_0} \right) \frac{\partial}{\partial t} - \frac{\cos^2 \alpha}{2} \frac{d^2 k_0^2}{d\omega_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathcal{E}(r, t) = - \frac{1}{c^2} (\omega_0^2 + 2i\omega_0 \frac{\partial}{\partial t}) \hat{e} \underline{\underline{\mathcal{E}}}(r, t) \hat{e} \mathcal{E}(r, t), \end{aligned}$$

où le module de k_0 est donné par :

$$k_0^2 = \frac{\omega_0^2}{c^2} \frac{\hat{e} \underline{\underline{\epsilon}}(\omega_0) \hat{e}}{\cos^2 \alpha} = \frac{\omega_0^2}{c^2} \epsilon(\hat{e}, \omega_0),$$

et où un terme en $\partial^2/\partial y^2$ a été négligé en vertu de notre hypothèse sur l'absence de diffraction. Effectuant le changement de variables :

$$x' = x + z \operatorname{tg} \alpha$$

(II.9)

$$z' = z + \frac{z}{v_g}$$

$$t' = t - \frac{z}{v_g}$$

où $v_g = (dk_0/d\omega_0)^{-1}$ est la vitesse de groupe dans le milieu dispersif, on aboutit à :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z'} \mathcal{E}(r', t') + \frac{i}{k_0 v_g} \frac{\partial^2}{\partial t' \partial z'} \mathcal{E}(r', t') = -\frac{i v_g}{4} \frac{d^2 k_0}{d\omega_0^2} \left(\frac{\partial}{\partial t'} + v_g \frac{\partial}{\partial z'} \right)^2 \mathcal{E}(r', t') \\ + \frac{i}{4c^2} \frac{v_g}{k_0} \left[\omega_0^2 + 2i\omega_0 \left(\frac{\partial}{\partial t'} + v_g \frac{\partial}{\partial z'} \right) \right] \frac{\hat{e} \delta \underline{\underline{\epsilon}}(r', t') \hat{e}}{\cos^2 \alpha} \mathcal{E}(r', t'), \end{aligned}$$

où les termes source de dispersion et de non-linéarité sont rejetés au second membre. En vertu de notre hypothèse de départ sur l'absence de réflexion dans le matériau, une transformation supplémentaire de cette équation est possible ; nous obtenons en effet un développement pour le deuxième terme du premier membre en prenant la dérivée par rapport à t' de tout le second membre, et en ne retenant que l'unique terme d'ordre 1 en $\partial/\partial t'$, les autres étant négligeables. Il vient, après retour aux variables x, z, t :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} + v_g \left(\frac{\partial}{\partial z} - \operatorname{tg} \alpha \frac{\partial}{\partial x} \right) \mathcal{E}(r, t) \\ \text{(II.10)} = \frac{v_g}{c} \left[i\omega_0 + \left(\frac{c}{\sqrt{\epsilon_0} v_g} - 2 \right) \frac{\partial}{\partial t} - \frac{c}{2\sqrt{\epsilon_0} v_g} \left\{ \frac{\partial}{\partial t} + v_g \left(\frac{\partial}{\partial z} - \operatorname{tg} \alpha \frac{\partial}{\partial x} \right) \right\} \right] \frac{\delta \underline{\underline{\epsilon}}(\hat{e}, r, t)}{2\sqrt{\epsilon_0}} \mathcal{E}(r, t) \\ - \frac{i v_g}{2} \frac{d^2 k_0}{d\omega_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E}(r, t), \end{aligned}$$

où nous avons défini :

$$\delta \underline{\underline{\epsilon}}(\hat{e}, r, t) = \frac{\hat{e} \delta \underline{\underline{\epsilon}}(r, t) \hat{e}}{\cos^2 \alpha} \text{ et } \epsilon_0 = \epsilon(\hat{e}, \omega_0).$$

Le terme $\partial^2/\partial t' \partial z'$ ainsi décomposé était simultanément représentatif des ondes planes allant vers l'avant et de celles allant vers l'arrière. L'ayant transformé en un terme source, nous avons réduit le degré de l'équation différentielle à l'ordre 1 ; seules sont considérées maintenant les ondes progressives allant vers l'avant. On voit immédiatement qu'en l'absence de non-linéarité et de dispersion, l'équation se ramène à :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + v_g \left(\frac{\partial}{\partial z} - t_g \alpha \frac{\partial}{\partial x} \right) \right] \mathcal{E}(r, t) = 0.$$

Il y a donc propagation sans distorsion de l'enveloppe le long des lignes caractéristiques

$$\begin{cases} t - \frac{z}{v_g} = C^{te} \\ x + z t_g \alpha = C^{te} . \end{cases}$$

En général la dispersion et la non-linéarité sont suffisamment faibles pour que nous puissions traiter le 2^e membre de (II.10) comme une perturbation. L'équation (II.10) décrit donc la lente évolution de l'enveloppe dans le repère lié à l'impulsion (dont la vitesse est v_g).

L'enveloppe se décompose en amplitude et phase :

$$(II.11) \quad \mathcal{E}(r, t) = \mathcal{A}(r, t) e^{i\varphi(r, t)}.$$

L'équation (II.10) se sépare alors en ses parties réelle et imaginaire, Suivant que l'on étudie le cas des liquides de Kerr ou celui des cristaux électrooptiques, on peut faire un certain nombre d'approximations.

Les liquides de Kerr étant isotropes au repos, on peut poser $\alpha = 0$; on aboutit au couple d'équations :

$$(II.12a) \quad \begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \varphi(z, t) = & \frac{1}{(1+\beta) \left[1 + (1+\beta) \frac{\delta \mathcal{E}(z, t)}{4 \epsilon_0} \right]} \left\{ \frac{\delta \mathcal{E}(z, t)}{2 \epsilon_0} \left[\omega_0 + (\beta-1) \frac{\partial}{\partial t} \varphi(z, t) \right] \right. \\ & \left. + \frac{\gamma}{2 \omega_0} \left[\left(\frac{\partial \varphi(z, t)}{\partial t} \right)^2 - \frac{1}{\mathcal{A}(z, t)} \frac{\partial^2 \mathcal{A}(z, t)}{\partial t^2} \right] \right\} \end{aligned}$$

$$(II.12b) \quad \begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \mathcal{A}(z, t) = & \frac{1}{(1+\beta) \left[1 + (1+\beta) \frac{\delta \mathcal{E}(z, t)}{4 \epsilon_0} \right]} \left\{ \frac{1}{2} (\beta-1) \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\delta \mathcal{E}(z, t)}{\epsilon_0} \mathcal{A}(z, t) \right) \right. \\ & \left. - \frac{1+\beta}{4} \mathcal{A}(z, t) \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \frac{\delta \mathcal{E}(z, t)}{\epsilon_0} + \frac{\gamma}{2 \omega_0} \left[\mathcal{A}(z, t) \frac{\partial^2 \varphi(z, t)}{\partial t^2} + 2 \frac{\partial \mathcal{A}(z, t)}{\partial t} \frac{\partial \varphi(z, t)}{\partial t} \right] \right\}, \end{aligned}$$

où les coefficients β et γ , issus de la décomposition de k_0 et de ses dérivées, sont donnés par :

$$\beta = \frac{a}{2} \text{ avec } a = \frac{\omega_0}{\epsilon_0} \frac{\partial \epsilon_0}{\partial \omega_0} \text{ et } \gamma = a + \frac{b}{2} - \frac{a^2}{4} \text{ avec } b = \frac{\omega_0^2}{\epsilon_0} \frac{\partial^2 \epsilon_0}{\partial \omega_0^2}$$

A l'ordre le plus bas, les équations (II.12) se simplifient pour donner :

$$(II.13a) \quad \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \varphi(z, t) = \frac{\omega_0}{1+\beta} \frac{\delta \mathcal{E}(z, t)}{2 \epsilon_0}$$

$$(II.13b) \quad \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \mathcal{A}(z, t) = \frac{1}{2} \frac{\beta-1}{\beta+1} \frac{\partial}{\partial t} (\delta \epsilon(z, t) \mathcal{A}(z, t)) .$$

Il ressort immédiatement de la comparaison de ces deux équations que la phase est beaucoup plus affectée par la non-linéarité que l'amplitude, les termes source relatifs à cette dernière étant d'ordre supérieur.

Pour les matériaux électrooptiques, qui sont biréfringents, mais où l'étalement spectral de l'impulsion laser sera généralement plus faible, nous négligerons les termes de dispersion d'ordre supérieur à 1 :

$$(II.14a) \quad \left[\frac{\partial}{\partial t} + v_g \left(\frac{\partial}{\partial z} - t_g \alpha \frac{\partial}{\partial x} \right) \right] \varphi(r, t) = \frac{1}{(1+\beta) \left[1 + (1+\beta) \frac{\delta \epsilon(\hat{e}, r, t)}{4\epsilon_0} \right]} \left[\omega_0 + (\beta-1) \frac{\partial \varphi}{\partial t}(r, t) \right] \frac{\delta \epsilon(\hat{e}, r, t)}{2\epsilon_0}$$

$$(II.14b) \quad \left[\frac{\partial}{\partial t} + v_g \left(\frac{\partial}{\partial z} - t_g \alpha \frac{\partial}{\partial x} \right) \right] \mathcal{A}(r, t) = \frac{1}{(1+\beta) \left[1 + (1+\beta) \frac{\delta \epsilon(\hat{e}, r, t)}{4\epsilon_0} \right]} \left\{ \frac{\beta-1}{2} \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{\delta \epsilon(\hat{e}, r, t) \mathcal{A}(r, t)}{\epsilon_0} \right] - \left(\frac{1+\beta}{4} \right) \mathcal{A}(r, t) \left[\frac{\partial}{\partial t} + v_g \left(\frac{\partial}{\partial z} - t_g \alpha \frac{\partial}{\partial x} \right) \right] \frac{\delta \epsilon(\hat{e}, r, t)}{\epsilon_0} \right\} .$$

Comme pour l'effet Kerr, la non-linéarité affecte principalement la phase.

De l'équation de Maxwell (I.1a), on tire pour le champ magnétique, qui est porté par l'axe O_y , l'expression suivante en fonction de $\mathcal{E}$:

$$(II.15) \quad \mathcal{H}(r, t) = \left\{ 1 + \frac{1}{i\omega_0} \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{c}{\sqrt{\epsilon_0}} \left(t_g \alpha \frac{\partial}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial z} \right) \right] \sum_{j=0}^{\infty} \left(\frac{1}{i\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} \right)^j \right\} \sqrt{\epsilon_0} \mathcal{E}(r, t) .$$

Au premier ordre en $\delta \epsilon$, il vient :

$$(II.16) \quad \mathcal{H}(r, t) = \sqrt{\epsilon_0 + \delta \epsilon(\hat{e}, r, t)} \mathcal{E}(r, t) .$$

Le spectre de l'impulsion est donné par :

$$(II.17) \quad S(\underline{Q}, \Omega) = \frac{c}{8\pi} \mathcal{R}_e [\mathcal{E}(\underline{Q}, \Omega) \mathcal{H}^*(\underline{Q}, \Omega)] ,$$

où $\mathcal{H}(\underline{Q}, \Omega)$ est la transformée de Fourier de $\mathcal{H}(r, t)$:

$$\mathcal{H}(r, t) = \int_{-\infty}^{\infty} d^3 \underline{Q} d\Omega \mathcal{H}(\underline{Q}, \Omega) e^{i[(\underline{k}_0 + \underline{Q}) \cdot \underline{r} - (\omega_0 + \Omega)t]} .$$

Dans l'approximation (II.16), (II.17) se réécrit :

$$(II.18) \quad S(\underline{Q}, \Omega) \simeq \frac{c}{8\pi} \sqrt{\epsilon_0 + \delta \epsilon(\hat{e}, r, t)} |\mathcal{E}(\underline{Q}, \Omega)|^2 ,$$

ou encore, dans la limite $\delta\epsilon \ll \epsilon_0$

$$(II.19) \quad S(\underline{Q}, \Omega) \approx \frac{c}{8\pi} \sqrt{\epsilon_0} |\mathcal{E}(\underline{Q}, \Omega)|^2.$$

Pour pouvoir résoudre les équations (II.14a) et (II.14b), il nous faut fixer l'expression de $\delta\epsilon(\underline{z}, t)$ en fonction de la nature de la non-linéarité, ainsi que les conditions initiales en $\underline{z} = 0$ à la face d'entrée du matériau. Le paragraphe II,2 est consacré au calcul de $\delta\epsilon$. En ce qui concerne les conditions initiales en $\underline{z} = 0$, nous nous placerons systématiquement dans le cas simple où $\varphi(0, t)$ est nul ; autrement dit l'onde lumineuse sera traitée comme une porteuse pure ω_0 modulée en amplitude. La modulation d'amplitude choisie représentera généralement une impulsion gaussienne unique. Toutes ces conditions sont une bonne approximation de la réalité expérimentale, sauf peut être dans le cas des impulsions picoseconde émises par les lasers à verre au néodyme à modes couplés, qui semblent posséder une modulation de phase initiale [44-45].

II,2. Equations des matériaux

Nous nous préoccupons maintenant d'établir le changement d'indice $\delta\epsilon$ qui se produit dans un matériau non-linéaire sous l'action d'impulsions optiques intenses et brèves ; seules de telles impulsions vont subir des distorsions d'enveloppe accessibles à la mesure. Compte tenu des durées des impulsions délivrées par les lasers déclenchés ou à modes couplés, il nous faut étudier la réponse des matériaux dans une échelle de temps allant de 10^{-9} à 10^{-12} secondes.

II,2.1. Effet Kerr

Cet effet est particulièrement important pour les liquides comme CS_2 et le nitrobenzène, dont les molécules, anisotropes, ont des polarisabilités principales $\alpha_{//}$ et $\alpha_{\perp}$ très différentes. Nous négligerons dans cette étude l'électrostriction qui, bien qu'elle vienne renforcer l'effet Kerr d'orientation, est trop lente ($\tau > 10^{-9}$ s) à s'établir.

Bien que beaucoup plus rapide, l'effet Kerr orientationnel possède des temps de réponse de l'ordre de 10^{-12} à 10^{-11} s, suivant les liquides, qui sont comparables aux durées de certaines impulsions optiques. Dans ces conditions, il n'est plus légitime de poser pour la susceptibilité diélectrique non-linéaire $\delta\epsilon$:

$$\delta\epsilon(\underline{z}, t) = 2\pi \chi^{(3)}(\omega, \omega, -\omega) \mathcal{E}(\underline{z}, t) \mathcal{E}^*(\underline{z}, t),$$

ainsi que nous l'avons fait dans (II.8) (le liquide étant isotrope au repos et l'axe principal du tenseur étant aligné avec la direction de polarisation du champ électrique, la notation tensorielle est abandonnée).

Le calcul de la réponse transitoire [23,46] s'effectue suivant la méthode exposée par Debye [47] pour l'effet Kerr dans les liquides à molécules polaires soumises à un champ quasi-statique. On considère la fonction de distribution $f(\theta, t)$ de l'ensemble des molécules anisotropes dont l'axe fait l'angle θ avec le champ appliqué. Cet ensemble tend à se distribuer suivant une loi de Boltzmann $e^{-U/kT}$ (où U est l'énergie potentielle des dipôles induits dans le champ), le mouvement de rotation de chaque molécule étant freiné par la viscosité du liquide.

On aboutit à une équation du type [23,46] :

$$(II.20) \quad \tau \frac{\partial}{\partial t} \delta\epsilon(t) = -(\delta\epsilon(t) - \epsilon_2 E^2(t)),$$

avec

$$\epsilon_2 = 4\pi \chi^{(3)} = \frac{8\pi}{45} \frac{(\alpha_{//} - \alpha_{\perp})^2}{kT} N$$

pour des molécules à symétrie axiale (e.g. CS_2). Ici τ est le temps de relaxation moléculaire, N la densité numérique, $\alpha_{//}$ et $\alpha_{\perp}$ les polarisabilités moléculaires principales ; on démontre [23,46] que :

$$\tau = \frac{4\pi}{3} \eta \frac{a^3}{kT},$$

où a est le rayon moyen de la molécule, η la viscosité du liquide, k la constante de Boltzmann et T la température.

La susceptibilité ϵ_2 dépend de la géométrie des molécules et de leur polarisabilité ; seule la fraction de E^2 qui varie à des fréquences $\leq 1/\tau$ est à retenir, c'est-à-dire le terme $1/2 |\epsilon(z,t)|^2$ dans nos notations. Les valeurs de τ s'échelonnent typiquement entre 2 picosecondes pour CS_2 et 50 pour le nitrobenzène. Les susceptibilités ϵ_2 sont de l'ordre de 10^{-11} u.e.s.

A titre de comparaison, la susceptibilité électronique dans de tels liquides est environ cent fois plus faible [48]. Elle peut cependant devenir prépondérante pour des impulsions laser de durée $t_p \ll \tau$, car son temps de réponse est de l'ordre de 10^{-15} à 10^{-16} s. On peut alors écrire :

$$\delta\epsilon = \epsilon_2 \text{ électronique } E^2.$$

Certaines expériences semblent indiquer la présence d'un tel effet en phase liquide et solide [49,83] et dans certains cristaux [50]. Signalons enfin la proposition récente de Polloni et coll [51] basée sur le «rocking», qui nous paraît discutable (voir Appendice A).

II,2.2. Rectification optique

Dans les expériences classiques de rectification optique [2,35,52], on prend soin, -tout comme dans les expériences de conversion paramétrique- de choisir un cristal qui ne soit pas absorbant pour l'une quelconque des trois ondes mises en cause dans l'interaction. Le problème est facilité par la relative monochromaticité des faisceaux laser et du champ électrique rectifié.

Ce n'est malheureusement pas le cas pour la rectification d'impulsions brèves uniques. Un examen grossier laisse en effet prévoir que le champ électrique engendré par l'impulsion optique ne possède qu'un ou deux cycles d'oscillation (voir chapitre IV) ; son spectre est par conséquent très élargi, contrairement à ce qui se passait pour la rectification d'une onde modulée en amplitude (dans ce dernier cas, le champ rectifié exhibait un grand nombre de périodes d'oscillation, et possédait donc une faible largeur de raie susceptible d'être analysée spectralement [35]). Cette restriction impose des limitations sévères sur le choix des cristaux. Un cristal convenable doit en effet posséder un $\chi^2(\omega, -\omega)$ élevé, mais aussi avoir une dispersion quasi nulle dans un domaine de fréquences compris entre 0 et 10^{12} Hz (si l'on utilise des impulsions laser de durée supérieure ou égale à 1 picoseconde).

Nous n'aborderons pas ici le problème de la mise en équations de matériaux dispersifs. Nous nous bornerons à l'étude de cristaux de tenseur diélectrique $\underline{\epsilon}_s$ constant sur tout le domaine spectral quasi statique qui nous intéresse (typiquement de 0 à 10^{12} Hz, soit de 0 à 30 cm^{-1}).

Le champ rectifié $\underline{E}_s(r, t)$ est donné par son équation d'onde :

$$(II.21) \quad \nabla_\perp \nabla_\perp \underline{E}_s(r, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \underline{D}_s^L(r, t) = - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \underline{P}_s^{NLS}(r, t),$$

où $\underline{D}_s^L(r, t)$ est l'induction statique linéaire :

$$\underline{D}_s^L(r, t) = \underline{\epsilon}_s \underline{E}_s(r, t),$$

avec $\underline{\epsilon}_s$ tenseur diélectrique statique, et où le terme source de polarisation est :

$$\underline{P}_s^{NLS}(r, t) = 2 \underline{\chi}^{(2)}(\omega_0, -\omega_0) \underline{E}'_{\omega_0}(r, t) \underline{E}'_{\omega_0}^*(r, t).$$

En toute rigueur, $\underline{E}'_{\omega_0}(r, t)$ n'est pas monochromatique et la susceptibilité $\chi^{(2)}$ dépend de ω ; mais nous supposons cette dernière constante dans le domaine spectral occupé par $\underline{E}'_{\omega_0}(r, t)$. Nous supposons en outre que cette susceptibilité est réelle, ainsi que le tenseur diélectrique $\underline{\epsilon}_s$ (ce qui découle d'ailleurs de notre hypothèse que $\underline{E}_s(r, t)$ n'a pas de composantes spectrales au voisinage d'une bande d'absorption du cristal).

Explicitant $\underline{E}'_{\omega_0}(r, t)$ à l'aide de (II.2), nous obtenons pour l'équation d'onde :

$$\left(\nabla_\perp \nabla_\perp + \frac{1}{c^2} \underline{\epsilon}_s \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \underline{E}_s(r, t) = - \frac{2\pi}{c^2} \underline{\chi}^{(2)}(\omega_0, -\omega_0) \hat{e} \hat{e} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E}(r, t) \mathcal{E}^*(r, t)$$

La solution générale de cette équation, qui doit satisfaire les conditions initiales $E_s(r, 0) = 0$ et $(\partial/\partial t) E_s(r, t)|_{t=0} = 0$, s'obtiendra très classiquement en ajoutant à une solution particulière de l'équation complète, la solution de l'équation homogène qui respecte les conditions aux limites sur les faces du cristal. Les matériaux électrooptiques étant généralement anisotropes, l'écriture de ces solutions est particulièrement lourde. Ces problèmes seront considérés au chapitre IV, où il apparaîtra que dans une grande partie des cas d'importance pratique, on pourra considérer les matériaux comme isotropes.

III - CALCULS DÉTAILLÉS ET RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DANS LES LIQUIDES DE KERR

Nous venons d'établir les équations gouvernant la propagation d'une impulsion lumineuse dans un milieu non-linéaire, ainsi que les équations, couplées aux précédentes, qui décrivent la réaction du milieu à l'excitation de cette impulsion ; nous devons maintenant nous préoccuper d'intégrer ce système aux dérivées partielles. Une intégration approchée est possible dans les cas simples. Si l'on veut tenir compte de façon précise de la dispersion, de la relaxation et des divers couplages, une intégration numérique sur ordinateur s'impose.

Le présent chapitre est consacré au cas de l'effet Kerr. La première partie expose les détails des calculs approchés et les résultats des calculs numériques ; la comparaison des spectres caractéristiques qu'acquièrent les impulsions au bout d'une certaine distance de propagation avec des spectres de filaments autoguidés y est également effectuée, justifiant ainsi un certain nombre d'hypothèses sur ces filaments. Dans la deuxième partie, qui est expérimentale, nous ferons usage de ces enseignements sur la modulation de phase pour déduire quelques unes des propriétés des filaments.

III.1. Intégration des équations aux dérivées partielles

III.1.1. en l'absence de relaxation et de dispersion

Il a été noté précédemment que la phase était plus affectée que l'amplitude par la non-linéarité, aussi l'analyserons-nous en premier.

a) phase

Si l'on néglige la dispersion, l'équation approchée (II-13a) relative à la phase se simplifie encore :

$$(III.1) \quad \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \varphi(z, t) = \frac{\omega_0}{1+\beta} \frac{\delta \epsilon}{2\epsilon_0}(z, t).$$

D'autre part, l'équation (II,20) relative à $\delta \epsilon$ a pour solution générale :

$$(III.2) \quad \delta \epsilon(z, t) = \frac{\epsilon_2}{2\tau} \int_{-\infty}^t e^{-\left(\frac{t-t'}{\tau}\right)} \mathcal{A}^2(z, t') dt'$$

qui, dans la limite où $\tau = 0$, se met sous la forme :

$$(III.3) \quad \delta \epsilon(z, t) = \frac{\epsilon_2}{2} \mathcal{A}^2(z, t),$$

et où $\mathcal{A}$ est l'amplitude, définie par la relation (II.11).

Supposant les distorsions de l'amplitude $\mathcal{A}$ négligeables (ce qui est vrai pour des distances de propagation faibles, compte tenu que le terme source en (II.13b) est d'ordre supérieur à celui de (II.13a)), l'enveloppe $\mathcal{E}$ peut s'exprimer simplement en fonction des variables caractéristiques ξ et η telles que :

$$(III.4) \quad \xi = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(t + \frac{z}{v_g} \right) \quad \eta = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(t - \frac{z}{v_g} \right)$$

Dans ces conditions, $\mathcal{E}$ ne dépend que de η , et l'on a :

$$\mathcal{E}(z,t) = \mathcal{E}(\eta) e^{i\varphi(\xi,\eta)}.$$

(III,1) s'intègre alors aisément ; compte tenu de l'expression (III,2) de $\delta\mathcal{E}$ et de la condition initiale $\varphi(z=0)=0$ à la face d'entrée du liquide, on trouve :

$$(III,5) \quad \varphi(\xi,\eta) = \frac{\xi-\eta}{(1+\theta)\sqrt{2}} \frac{\omega_0}{2\epsilon_0} \frac{\epsilon_2 \mathcal{E}_0^2}{2} \int_{-\infty}^t \frac{e^{-\left(\frac{t-t'}{\tau}\right)}}{\tau} \frac{\mathcal{E}^2(z,t')}{\mathcal{E}_0^2} dt'$$

où $\mathcal{E}_0$ est la valeur maximale de $\mathcal{E}$. L'expression intégrale a été conservée en variables t, z . Si $\mathcal{E}$ ne dépend que de η , on démontre en effet qu'elle ne dépend que de η , sa dérivée partielle par rapport à ξ étant identiquement nulle ; en d'autres termes, elle se comporte comme une constante dans l'intégration de (III,1).

D'où

$$(III,6) \quad \varphi(z,t) = \alpha \int_{-\infty}^t \frac{e^{-\left(\frac{t-t'}{\tau}\right)}}{\tau} \left(\frac{\mathcal{E}(z,t')}{\mathcal{E}_0} \right)^2 dt'$$

où

$$\alpha = k_0 z \epsilon_2 \mathcal{E}_0^2 / 4 \epsilon_0.$$

Dans le cas simple d'un milieu à relaxation très rapide :

$$(III,7) \quad \varphi(z,t) = \alpha \mathcal{E}^2(z,t) / \mathcal{E}_0^2$$

L'étalement spectral $\Delta\Omega$ de l'impulsion de durée t_p étant de l'ordre de $|\partial\varphi/\partial t|$, on voit que $\Delta\Omega \approx \alpha/t_p$

Explicitons α sous la forme :

$$(III,8) \quad \alpha = 2\pi \frac{z}{\lambda} \frac{\delta n_{\max}}{n_0}$$

avec $\delta n_{\max} = \frac{\epsilon_2 \mathcal{E}_0^2}{4 n_0}$ changement d'indice maximum au centre de l'impulsion, $\epsilon_0 = n_0^2$

et λ longueur d'onde dans le milieu.

L'effet peut être interprété comme un effet « pseudo Doppler » déphasant le centre de l'impulsion (où la vitesse est plus faible) relativement à ses extrémités, ce déphasage étant proportionnel à δn et à la distance parcourue z .

Le spectre proprement dit, très caractéristique, se comprend grâce à un argument proposé par Shimizu [29] (fig. 2).

En effet, pour une distance de propagation z , ce spectre est donné par :

$$S(z,\omega) = \frac{cn}{8\pi} |E(z,\omega)|^2$$

où $E(z,\omega)$ est la transformée de Fourier en temps de $E(z,t)$:

$$E(z,\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(z,t) e^{-i\omega t} dt.$$

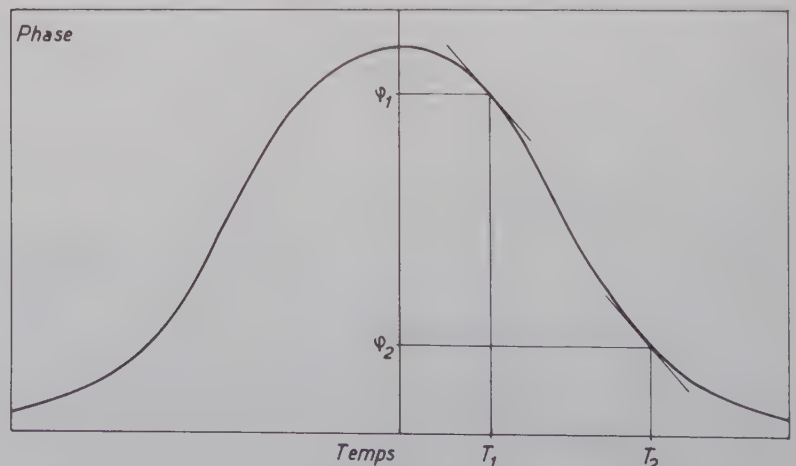


Fig. 2 - Courbe de phase en fonction du temps dans le cas d'une impulsion Gaussienne et d'un milieu sans relaxation.

Or, la contribution principale à une fréquence particulière $\omega = \omega_0 + \delta\omega$ du spectre de $E(z, t)$ vient de la portion d'intégrale au voisinage des points où le shift instantané $-(\partial/\partial t) \delta\varphi$ est égal à $\delta\omega$.

La condition $-(\partial/\partial t) \delta\varphi = \delta\omega$ est en général satisfaite à deux instants t_1 et t_2 . Les contributions à l'intégrale en ces points peuvent s'écrire sous la forme $I_1 e^{i\varphi_1}$ et $I_2 e^{i\varphi_2}$, respectivement, le spectre lumineux étant proportionnel à $I_1^2 + I_2^2 + 2I_1 I_2 \cos(\varphi_2 - \varphi_1)$ où $\varphi_2 - \varphi_1$ est donné approximativement par $\varphi_2 - \varphi_1 = \delta\varphi(t_2) - \delta\varphi(t_1) - (t_2 - t_1) \delta\omega$.

Le terme d'interférence $2I_1 I_2 \cos(\varphi_2 - \varphi_1)$ produit une structure périodique sur tout le spectre car, pour une impulsion « en cloche », $\varphi_2 - \varphi_1$ est fonction monotone de $\delta\omega$.

Certaines précisions complémentaires qualitatives sont fournies par une approche très voisine du même problème. $S(z, \omega)$ peut en effet être considéré comme la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation de $E(z, t)$. Celle-ci s'écrit :

$$\int dt \mathcal{E}(t) \mathcal{E}(t+t') e^{i(\varphi(t) - \varphi(t+t'))}.$$

Seuls les points t_1 et t_2 satisfaisant à la condition de phase stationnaire

$$\left. \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_{t_1} = \left. \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_{t_2} \quad \text{avec } t' = t_2 - t_1$$

contribuent à l'intégrale ; cette dernière est de l'ordre de

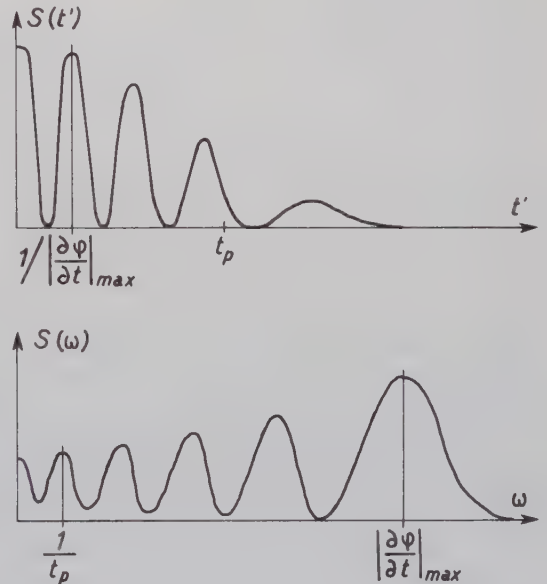
$$\mathcal{E}(t_1) \mathcal{E}(t_2) e^{i(\varphi(t_1) - \varphi(t_2))}.$$

La partie réelle de cette fonction est représentée sur la figure 3 (courbe 1). Le produit $\mathcal{E}(t_1) \mathcal{E}(t_2)$ passe par un maximum aux environs de $t_2 = t_1$ (point d'inflexion) sur la courbe de la figure 2. D'autre part, c'est aussi en ce point que $\varphi(t_1) - \varphi(t_2)$ varie le plus vite ; les oscillations de la courbe 1 vont donc s'étalant pour t' croissant. La transformée de Fourier d'une telle fonction est esquissée sur la courbe 2. Un certain nombre de caractéristiques évidentes sont soulignées :

- la période des oscillations au voisinage de ω_0 est de l'ordre de $1/t_p$;
- la période et l'intensité vont croissant avec $\delta\omega$

Fig. 3 - COURBE 1 - Forme générale de la partie réelle de la fonction d'autocorrélation (symétrique) de l'enveloppe $E(z, t)$. La demi largeur de l'enveloppe est de l'ordre de $1/t_p$ et le premier maximum a lieu pour : $t' = \frac{1}{\left| \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_{\max}}$

COURBE 2 - Esquisse de la transformée de Fourier de la courbe 1 ; la composante spectrale la plus intense correspond au premier maximum de la courbe 1, et la largeur à mi-hauteur des premiers maxima est environ l'inverse de la largeur à mi-hauteur de l'enveloppe de la courbe 1.



Il est possible de préciser [53] le premier point (toujours pour un temps de relaxation nul). En effet, au voisinage du point d'inflexion t_0 de la courbe de phase (fig. 2), on peut développer φ sous la forme :

$$(III.9) \quad \varphi = \beta(t - t_0) + \omega(t - t_0)^3$$

Le spectre est alors proportionnel à

$$\left\{ A \left[(3a)^{-1/3} (\delta\omega - \beta) \right]^2 \right\},$$

carré d'une fonction d'Airy. Dans la limite d'un grand étalement spectral, on peut utiliser le développement

spectral, on peut utiliser le développement asymptotique de A pour les composantes spectrales au voisinage de ω_0 ($\delta\omega \approx 0$).

La périodicité est $\delta\omega_p \approx \pi (3\alpha/\beta)^{1/2}$. Ceci est indépendant de la magnitude de la non-linéarité, et ne dépend que de la largeur et de la forme de l'impulsion. Pour des impulsions de forme Lorentzienne, Gaussienne ou sinusoïdale, on trouve respectivement pour $\delta\omega_p$:

$$\frac{\sqrt{2}\pi}{t_p}, \quad \sqrt{2\log 2} \frac{2\pi}{t_p} \quad \text{et} \quad \frac{\pi^2}{\sqrt{2}t_p},$$

t_p étant la largeur à mi-hauteur.

Toutes les considérations précédentes sur le spectre sont qualitatives. Il est cependant un cas où il est possible de trouver pour ce spectre une expansion analytique exacte. En effet, pour une onde continue modulée en amplitude, on a une décomposition en somme de fonctions de Bessel. C'est à **Cheung, Rank, Chiao et Townes** [30] que l'on doit d'avoir traité ce problème. Ils ont considéré un faisceau de porteuse ω_0 faiblement modulé en amplitude à la fréquence ω_s :

$$E(z, t) = E_0 e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + E_1 e^{i(k_1 z - \omega_1 t)},$$

avec

$$k_i = \frac{\sqrt{\epsilon_0} \omega_i}{c}, \quad \omega_1 = \omega_0 + \omega_s \quad \text{et} \quad E_1 \ll E_0.$$

Le battement entre les deux fréquences ω_0 et ω_s module l'indice à la fréquence ω_s et introduit, comme pour l'impulsion unique, un chemin optique dépendant du temps. Il en résulte un déphasage dépendant du temps $\varphi(z, t)$ qui s'écrit, dans la limite d'un temps de relaxation nul:

$$\varphi(z, t) = kz \frac{\epsilon_2}{\epsilon_0} E_0 E_1 \cos \omega_s t$$

Le spectre est alors donné par:

$$(III.10) \quad S(z, \omega_0 - m\omega_s) = \frac{cn}{8\pi} \left[E_0^2 J_m^2(\alpha) + E_1^2 J_{m+1}^2(\alpha) \right]$$

avec

$$\alpha = k_0 z \frac{\epsilon_2 E_0 E_1}{\epsilon_0}.$$

Autrement dit, une série de M bandes latérales symétriques ($M \approx \alpha$) espacées de ω_s est créée de part et d'autre de ω_0 , l'intensité de la m^{e} étant proportionnelle à $J_m^2(\alpha)$. Notons que cet α est à moitié de celui défini dans (III.6).

Le paragraphe III.1.3 présentera des résultats expérimentaux sur les filaments et les résultats numériques dont les caractères généraux viennent d'être exposés. Tournons nous maintenant vers les distorsions d'amplitude, qui n'ont d'ailleurs pu être observées expérimentalement à ce jour. **Landauer** [54], et **De Martini et coll** [22], ont fait une discussion détaillée de ce problème. Aussi nous contenterons nous d'esquisser les grandes lignes de leurs calculs et les résultats les plus significatifs.

b) amplitude

L'équation relative à l'enveloppe (II.12b) se met sous la forme ([55], Appendice A):

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \left(\epsilon + \frac{\delta\epsilon}{4\epsilon_0} \epsilon \right) = - \frac{\omega_0}{2i} \frac{\delta\epsilon}{\epsilon_0} \epsilon - \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial\epsilon}{\partial\epsilon_0} \epsilon \right).$$

Multipliant par $\mathcal{E}^*$, et ajoutant le complexe conjugué de l'ensemble, on aboutit à :

$$(III.11) \quad \frac{\partial}{\partial z} (\rho v) + \frac{\partial}{\partial t} \rho + \frac{\rho}{2\mathcal{E}} \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t} - \frac{1}{4} \delta \mathcal{E} \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \left(\frac{\rho}{\mathcal{E}} \right) = 0$$

où

$$\rho = \frac{\mathcal{E}}{8\pi} \mathcal{E} \mathcal{E}^*$$

est la densité d'énergie et $v = c/\sqrt{\mathcal{E}}$ avec $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 + \delta \mathcal{E}$.

Abandonnant le troisième terme, qui est d'ordre $(\delta \mathcal{E})^2$, nous voyons que l'équation (III.11) se réduit à l'équation 6 de référence 22. Nous ne reprendrons pas la discussion relative aux distorsions d'intensité de l'impulsion. Rappelons qu'il est commode de définir deux nouvelles vitesses distinctes :

- la vitesse d'écoulement de l'énergie :

$$v_e = \frac{c}{\sqrt{\mathcal{E}_0}} \left(1 - \frac{3}{4} \frac{\delta \mathcal{E}}{\mathcal{E}_0} \right)$$

- la vitesse d'un point possédant une intensité donnée sur l'enveloppe optique :

$$v_{en} = \frac{c}{\sqrt{\mathcal{E}_0}} \left(1 - \frac{3}{2} \frac{\delta \mathcal{E}}{\mathcal{E}_0} \right) .$$

C'est ainsi que le sommet de l'impulsion se déplace plus lentement que les flancs ; le flanc de descente se raidit. Au bout d'une certaine distance, appelée distance de choc z_c telle que

$$z_c \simeq 0,38 \frac{\sqrt{\mathcal{E}_0}}{\delta \mathcal{E}} \cdot c \ell_p ,$$

où ℓ_p est la largeur $1/e$ de l'impulsion supposée Gaussienne, il se forme une discontinuité (ou choc) sur le flanc de descente.

III,1.2. Influence de la relaxation

Lorsque la durée ℓ_p de l'impulsion est comparable au temps de relaxation τ , il n'est plus légitime d'utiliser l'équation simplifiée (III.3) pour le matériau. Pour la même raison, le développement (III.7) n'est plus utilisable pour représenter la phase ; c'est la formule (III.6) qui donne maintenant le profil de cette phase. Les conclusions concernant l'amplitude $\mathcal{A}$ sont également modifiées.

a) phase

La relation (III.6) montre que la phase présente toujours en chaque point z une forme constante indépendante de z , et qu'elle exhibe la même proportionnalité en z que précédemment. La forme est caractéristique de la relaxation du milieu derrière l'impulsion ; cette relaxation donne à la courbe de phase une queue de décroissance exponentielle. Une conséquence immédiate est que l'aile antistokes du spectre se trouve atrophiée relativement à l'aile Stokes, puisque la valeur de

$$\Delta \omega = \left| \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_{max}$$

est maintenant plus grande à l'avant qu'à l'arrière de l'impulsion. Ceci apparaîtra clairement dans les exemples numériques du paragraphe II,1.3.

b) amplitude

L'évolution de l'amplitude est semblable à ce qu'elle est dans le cas où $\tau \ll \ell_p$. Cependant la formation du choc est ralentie [22] ; en outre, de l'énergie est dissipée dans le milieu, ce qui réduit l'intensité crête [22].

III,1.3. Résultats numériques

Bien qu'il soit possible, ainsi qu'il vient d'être fait, de prédire un certain nombre des aspects de la propagation des impulsions par simple examen des équations (II,13) et (II,20), il est néanmoins nécessaire d'obtenir des données quantitatives plus précises si l'on veut effectuer des comparaisons avec l'expérience. Il est donc important de tenir compte du couplage entre les diverses équations et les termes d'ordre supérieur.

C'est pourquoi les équations (II,12) et (II,20) ont fait l'objet de calculs numériques. L'intégration est accomplie grâce à la technique de Runge-Kutta, les dérivées partielles des termes source étant estimées par la méthode des différences finies (les détails sont exposés dans l'Appendice B). Enfin, la transformée de Fourier de $\mathcal{E}(z, t)$ nécessaire au calcul du spectre est obtenue à l'aide de la routine de Cooley-Turkey.

Les seules données expérimentales qu'il soit possible d'analyser à ce jour sont fournies par les filaments autoguidés. Toutes les approximations que nous avons faites au cours des différents calculs (entre autres sur $\mathcal{E}$ et les durées d'impulsions) sont valables dans le cas des filaments, ce qui justifie a priori la comparaison entre ces calculs et les résultats obtenus sur les filaments.

FILAMENTS AUTOGUIDÉS ET AUTOFOCALISATION

On a pu démontrer l'existence de filaments lumineux intenses dans les faisceaux laser traversant des liquides dont l'indice dépend de l'intensité [41,56], principalement les liquides de Kerr (pour une discussion détaillée sur les filaments, voir [31]). La propagation en filaments, qui va de paire avec l'autofocalisation, se produit quand la puissance dépasse un seuil d'une centaine de kilowatts. Le mécanisme responsable de la formation de ces filaments est bien compris [41], ainsi que celui de l'autofocalisation [40]. Revoyons-les brièvement l'un et l'autre.

Considérons un faisceau lumineux possédant une distribution radiale d'intensité Gaussienne. A la traversée d'un liquide de Kerr, ce faisceau induit un changement d'indice Δn , proportionnel à l'intensité, qui est plus important au centre que sur les bords. Si les surfaces équiphasés sont initialement planes (faisceau parallèle), nous voyons qu'elles se déforment, le centre se propageant moins vite que les bords ; elles deviennent concaves, leur concavité tournée vers l'avant. En d'autres termes, le faisceau se focalise. La zone focale est à une distance z_f de la face d'entrée telle que

$$z_f \approx \frac{d}{2} \sqrt{\frac{n_0}{2\Delta n}}$$

où Δn est le changement d'indice au centre du faisceau et d le diamètre initial [41].

Ceci est appelé autofocalisation. Dans ce modèle simple, qui ne tient pas compte de la saturation d'indice et de la diffusion stimulée, le faisceau est focalisé en un ou plusieurs points voisins (en fait il y a en général plusieurs points focaux en raison des aberrations) et rediverge après.

Les filaments, dont on constate qu'ils émanent de ces zones focales, sont généralement attribués à un mécanisme très voisin. Dans ce schéma, on suppose que le faisceau laser d'ondes planes possède une intensité telle que la diffraction est tout juste équilibrée par l'effet de focalisation. L'angle de diffraction d'un faisceau de diamètre d est

$$\theta_{diff} \approx \frac{1,22\lambda}{n_0 d},$$

où λ est la longueur d'onde et n_0 l'indice.

Par ailleurs, du fait du gradient d'indice Δn entre l'axe et les bords du faisceau, il existe un angle critique de réfraction tel que

$$\cos \theta_{crit.} = \frac{n_0}{n_0 + \Delta n},$$

soit

$$\theta_{crit.} = \sqrt{\frac{2\Delta n}{n_0}} = \left(\frac{n_2 |\mathcal{E}_0|^2}{n_0} \right)^{1/2}$$

avec $\Delta n = \frac{n_2 |\mathcal{E}_0|^2}{2}$ où $n_2 = \frac{\epsilon_2}{2n_0}$.

On conçoit que le diamètre d du faisceau restera constant si

$$\theta_{diff} \approx \theta_{crit.}$$

La condition de stabilité généralement admise est que le changement d'indice Δn soit saturable [41,57,58] ; faure de quoi l'équilibre est instable et il y a défocalisation ou focalisation catastrophique au bout d'une distance plus ou moins grande comme nous venons de voir plus haut.

Bien qu'elle ait été mise en question par **Lugovoi et coll** [59-61], cette hypothèse d'autoguidage est la plus communément admise pour expliquer les filaments. Elle a d'ailleurs pu être justifiée indirectement par des mesures portant sur les caractéristiques spectrales, qui s'interprètent de façon simple par la modulation de phase (voir ci-dessous).

Les filaments présentant des intensités élevées ($\approx 20 \text{ GW/cm}^2$), tous les phénomènes de modulation de phase et déformation d'enveloppe doivent y être importants. De fait, la figure 4 montre bien que leurs spectres sont caractéristiques ; nous avons essayé de reproduire de tels spectres par calcul numérique.

Fig. 4 - Spectres expérimentaux d'une série de filaments imagés sur la fente d'entrée du spectrographe. Une densité atténuée le fond non trapé au voisinage de $\lambda_0 = 6943 \text{ \AA}$.



RÉSULTATS NUMÉRIQUES TYPQUES - COMPARAISON AVEC L'EXPÉRIENCE

La figure 5, courbe a, illustre le développement spectral que devrait acquérir une impulsion Gaussienne de 0,8 ps traversant un liquide de Kerr avec temps de relaxation nul. Le résultat numérique est obtenu pour une valeur du paramètre α égale à 120. ($\lambda = 6943 \text{ \AA}$). On note la symétrie de position des différents maxima de part et d'autre de la porteuse ω_0 du fait de la symétrie de la courbe de phase. Ce spectre présente en revanche une asymétrie d'intensité attribuable en partie à la distorsion de la courbe d'amplitude (self-steepening) et en partie à l'approximation (II.19) utilisée dans le calcul de la composante spectrale à $\omega_0 + \Omega$ (la formule (II.18) eût été préférable à cet égard).

Le spectre de la courbe b fut obtenu dans les mêmes conditions, mais en prenant un temps de relaxation τ de 2 picosecondes. On voit comment la queue exponentielle de $\delta \epsilon$, donc de la phase, se répercute sur l'aile antistokes en l'atrophiant.

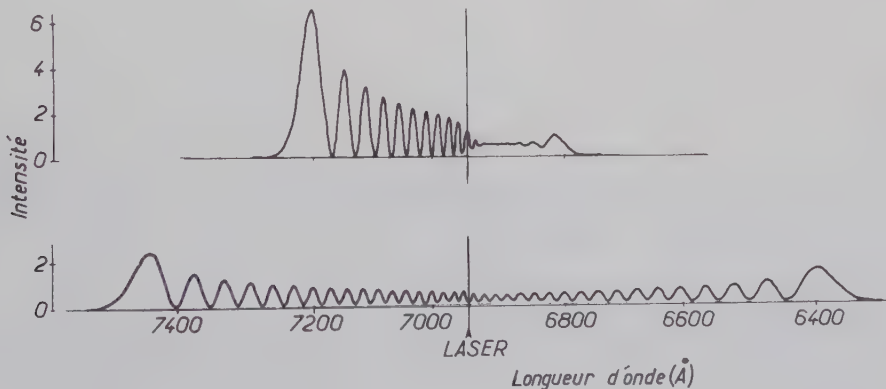


Fig. 5 - Spectre théorique d'une impulsion de 0,8 ps dans un milieu sans relaxation pour $\alpha = 120$, avec un temps de relaxation $\tau = 2 \text{ ps}$ (courbe supérieure), et $\tau = 0$ (courbe inférieure).

Sur la figure 6 sont représentés trois spectres (ailes Stokes). La courbe b fut obtenue par mesure densitométrique sur un spectre réel de filament dans le sulfure de carbone par **Cheung et coll** [30]. La courbe a fut obtenue numériquement par ces mêmes auteurs, dans l'hypothèse $\tau = 0$, pour une onde modulée en amplitude à la fréquence $\omega_s = 2,5 \text{ cm}^{-1}$, à l'aide de la formule (III.10) (α vaut ici 50).

A titre de comparaison, la courbe c fut obtenue [55] par calcul pour une impulsion Gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à 6,1 ps. On remarque qu'il y a peu de différence entre le développement spectral d'une impulsion Gaussienne unique et celui d'une onde modulée sinusoidalement dont la période (13 ps) est voisine du double de la largeur de l'impulsion Gaussienne. Cependant, le spectre correspondant à la modulation sinusoidale possède une structure discrète dont les composantes sont espacées de ω_s . Cette structure discrète est rarement rencontrée expérimentalement, ainsi que nous le verrons en III.2.

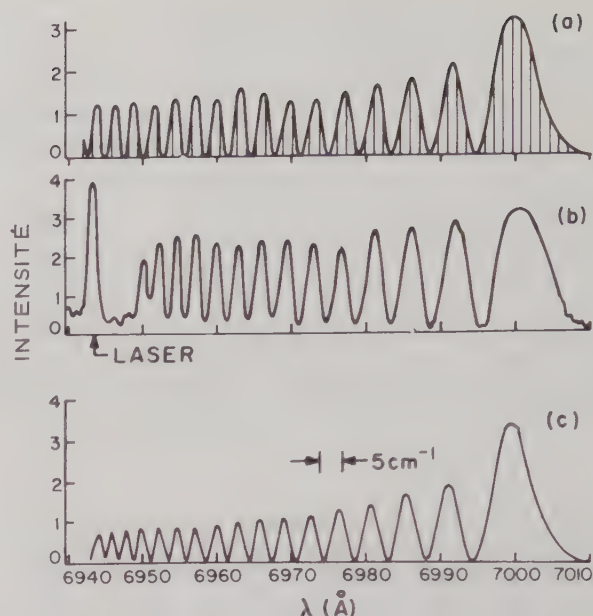


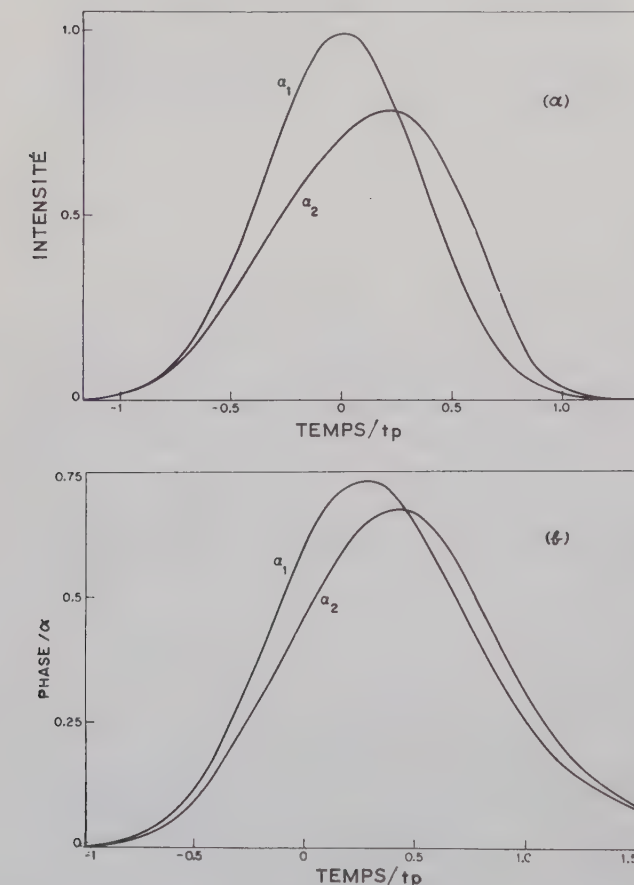
Fig. 6 - Spectre d'un filament dans le sulfure de carbone.
a) calcul théorique de Cheung et coll.
b) modèle expérimental de Cheung et coll.
c) calcul théorique supposant une impulsion Gaussienne au départ, de largeur $1/e$ égale à 7,4 ps, et pour $\alpha = 107$.

La figure 7a représente l'évolution de l'enveloppe d'une impulsion initialement Gaussienne pour deux distances de propagation z_1 et z_2 , et en tenant compte de la relaxation.

Sur la figure 7b se trouve la courbe de phase correspondante. La durée de l'impulsion (à mi-hauteur) est de 4 ps, le temps de relaxation est de 2 ps.

Fig. 7 - Influence de la relaxation sur l'évolution de l'impulsion. L'enveloppe initiale est Gaussienne. Sa largeur $1/e$ est t_p . Le rapport du temps de relaxation à t_p est 0,36.

- a) courbes enveloppes $\frac{c n_0}{8\pi} |E|^2$ normalisées au maximum initial de la Gaussienne, représentées pour deux valeurs du paramètre de phase $\alpha_1 = 117$ et $\alpha_2 = 2396$. Pour la distance de choc z_c , $\alpha = 2635$.
- b) courbes de phase correspondantes, normalisées relativement à α .



Le spectre résultant pour la distance z_1 (fig. 8) illustre l'influence de la relaxation sur le côté antistokes : l'extension est moindre que pour le côté Stokes, et le contraste de l'effet d'interférence est moins bon. Ceci est dû à la queue exponentielle de la courbe de phase ; en effet, des deux points de l'enveloppe $|A(z, t)|^2$ qui contribuent à une fréquence donnée, celui qui est le plus près du centre domine encore plus qu'en l'absence de relaxation, et le contraste tend vers 0 pour les fréquences voisines de la porteuse ω_0 . Cependant, ce contraste redevient voisin de 1 pour les upshifts plus grands, car le rapport des amplitudes des 2 points de l'enveloppe tend vers 1 au voisinage du point d'inflexion de la courbe de phase.

En revanche, le spectre Stokes possède un contraste comparable à celui observé en l'absence de relaxation. Il est en outre moins étalé, la courbe de phase étant «atrophée» par la relaxation. Mais cette compression est

encore plus prononcée du côté antistokes en raison de la queue exponentielle. Enfin, le côté antistokes possède une intensité totale inférieure au côté Stokes en raison du retard du sommet de la courbe de phase relativement au sommet de l'impulsion.



Fig. 8 - Spectre de l'impulsion représentée sur la figure 7 pour le paramètre α_1 . On a choisi $\lambda_0 = 6943 \text{ \AA}$, $\tau_p = 5 \text{ ps}$. Le temps de relaxation τ est pris égal à celui de CS_2 : 1,7 ps.

Sur la figure 9 est représenté le spectre obtenu dans le cas d'une modulation sinusoïdale ; on a choisi α et la fréquence de modulation ω_s de façon à obtenir le même nombre de maxima du côté Stokes et le même étalement spectral que dans le cas précédent. La profondeur de modulation est de 100 %. On note que dans ce cas, l'extension de l'aile antistokes est comparable à celle de l'aile Stokes.

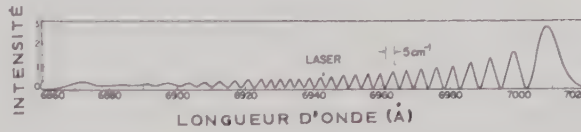


Fig. 9 - Spectre d'un faisceau lumineux périodique, dont l'intensité est modulée sinusoïdalement à 100 % ; la période est de 10,2 ps, le temps de relaxation de 1,7 ps. α est pris égal à 146, de façon à donner au côté Stokes le même nombre de maxima qu'en figure 8. Seule l'enveloppe des différentes composantes discrètes est représentée. On note que, bien que le nombre de maxima et l'étalement total soient les mêmes dans les deux cas, l'espacement des maxima au voisinage de ω_0 est différent, ce qui résulte des différences de forme entre Gaussienne et sinusoïde. On vérifie d'ailleurs que la demi-période de 5,1 ps est plus grande que la largeur à mi-hauteur 4,3 ps de la Gaussienne correspondante.

En outre (fig. 10), le point de contraste nul du spectre est déplacé vers l'extrémité de l'aile antistokes. Le choix d'une profondeur de modulation inférieure à 100 % conduirait à améliorer le contraste de cette aile antistokes.

Enfin, la figure 11a montre le spectre expérimental d'un filament observé dans un mélange 2/3 CS_2 -1/3 benzène en volume et produit par une impulsion de laser à rubis déclenché. Dans ce spectre, les maxima voisins de $\lambda = 6943 \text{ \AA}$ étaient séparés par $3,5 \text{ cm}^{-1}$. Un spectre similaire (fig. 11b) a été obtenu théoriquement [55] en supposant une impulsion Gaussienne de largeur 5,4 ps, et en prenant un temps de relaxation de 9 ps. Il a fallu choisir $\alpha = 265$ pour obtenir le développement correct. Or, il a été établi [42,63] que les filaments dans le sulfure de carbone présentent des changements d'indice de l'ordre de $1,3 \cdot 10^{-3}$, ce qui est en bon accord avec ce que l'on sait de la susceptibilité de ce liquide et des valeurs des intensités lumineuses dans les filaments [64].

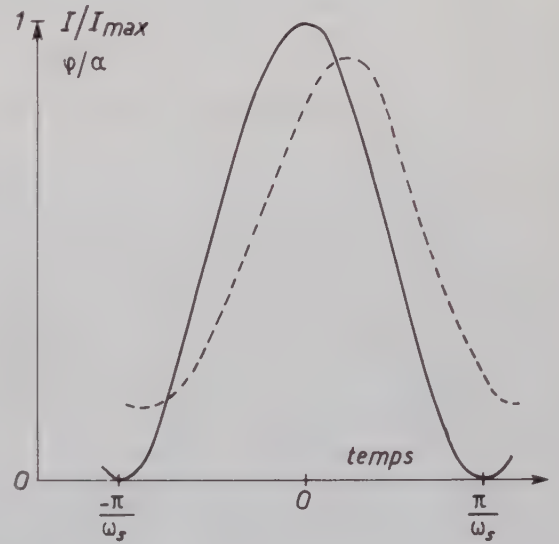


Fig. 10 - Enveloppe et courbe de phase correspondante dans le cas d'une modulation sinusoïdale à 100 %. Le point de contraste nul correspond aux minima de l'intensité.

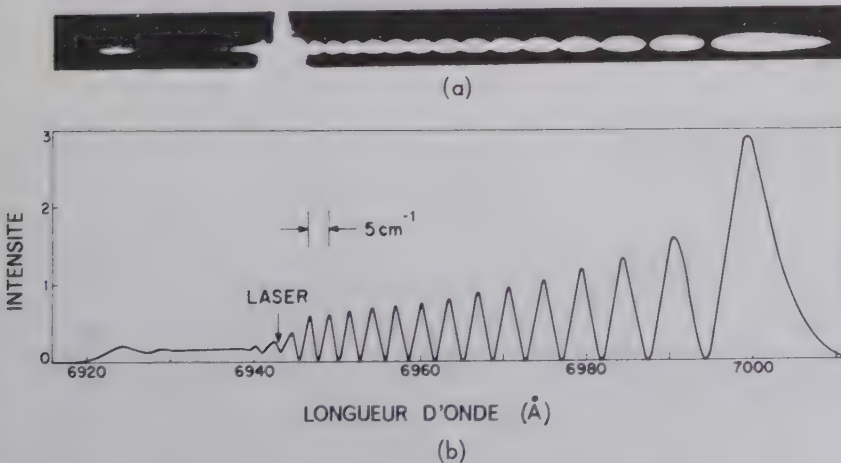


Fig. 11 - a) Spectre expérimental b) Image théorique pour une impulsion Gaussienne de largeur à mi-hauteur 4,5 ps, avec $\tau = 9 \text{ ps}$ et $\alpha = 265$.

Sachant que

$$\alpha = \frac{2\pi}{\lambda_0} z \frac{\delta \epsilon}{2\sqrt{\epsilon_0}},$$

on déduit que $z = 2,3$ cm, avec $n_0 = 1,62$ et $\lambda_0 = 6943 \text{ \AA}$. Un tel spectre permet donc de déterminer le temps de relaxation du milieu, ainsi que la distance de propagation et la durée de l'impulsion trappée dans le filament. Cependant, le choix d'une autre forme d'impulsion pourrait conduire à des valeurs légèrement différentes.

Ainsi, la théorie générale de la modulation de phase permet d'interpréter de façon satisfaisante les observations spectrales sur les filaments autoguidés. Elle fournit en outre une mesure de leur durée, et nous renseigne sur leur forme, ainsi que sur le temps de relaxation d'orientation des liquides de Kerr. La modulation de phase est le seul moyen à ce jour de mesurer les durées de filaments, faute de détecteurs suffisamment rapides (en réalité, très peu de paramètres sur les filaments sont directement accessibles, en dehors de leur énergie et leur diamètre [31]).

La seconde partie du chapitre sera consacrée à une étude plus systématique des filaments par le biais de la modulation de phase. Nous en retirerons une meilleure connaissance d'un certain nombre de paramètres caractéristiques, tels que la distance de propagation et le changement d'indice.

III,2. Etude expérimentale des filaments à l'aide de la modulation de phase

Récemment, la nature même des filaments, et plus particulièrement le caractère autoguidé de leur propagation, ont été remis en doute [59-62]. Un certain nombre d'expériences ont donc été entreprises afin d'estimer les distances de propagation de ces faisceaux très intenses de quelques microns de diamètre ; ceci a pu se faire grâce à des mesures portant sur leur développement spectral.

Mais auparavant, nous étudierons quelques propriétés spectrales de structure fine qui semblent indiquer que les filaments sont dus à des impulsions brèves uniques, et non à un faisceau quasi continu modulé en amplitude (hypothèse de **Cheung et coll** [30]).

Enfin, un certain nombre de résultats récents obtenus avec des impulsions de laser à modes couplés seront présentés ; ces résultats attirent l'attention sur la dynamique des filaments et les causes de leur stabilité [57].

III,2.1. Structure et durée des impulsions

A fort niveau d'excitation, la source étant un laser à rubis multimode déclenché, les filaments dans le sulfure de carbone ont tous des spectres compliqués (fig. 12a) étalés sur plusieurs milliers de cm^{-1} ; on arrive parfois à reconnaître un fragment de structure typique du genre de celui de la figure 11 au voisinage de $6943 \text{ \AA}$, mais on note fréquemment par endroits une structure fine périodique. Ces spectres complexes peuvent recevoir une explication simple. En effet, les intensités élevées ($\geq 20 \text{ Gw/cm}^2$) dans les filaments sont généralement supérieures au seuil de Raman stimulé. Donc, au cours de sa propagation en filaments, une impulsion laser subit simultanément la modulation de phase et la conversion stimulée dans les premiers ordres de Stokes et antistokes ($\Delta \nu_{\text{Raman}} = 656 \text{ cm}^{-1}$).

C'est ce que montre la figure 12b pour des distances de propagation petites. Pour des distances de propagation plus grandes, ces spectres évoluent vers des formes semblables à celles de la figure 12a (à fort niveau d'excitation) ou de la figure 12c (à faible niveau d'excitation). Dans ce dernier cas, la conversion en Raman s'est interrompue rapidement, la modulation de phase ayant étalé le spectre et annulé le gain suivant un mécanisme discuté par **Brewer et coll** [31]. Dans la partie où ils se superposent, le spectre Raman et le spectre laser interfèrent, donnant lieu à une structure fine bien visible. Pour certaines conditions de faible excitation, il n'y a de conversion en Raman à aucun moment de l'histoire du filament (fig. 12d). Ceci n'est vrai que pour le sulfure de carbone ; dans le nitrobenzène et le toluène par exemple l'intensité seuil de diffusion Raman stimulée est inférieure à l'intensité qui circule dans les filaments et l'on ne peut y observer de filaments exempts de Raman.

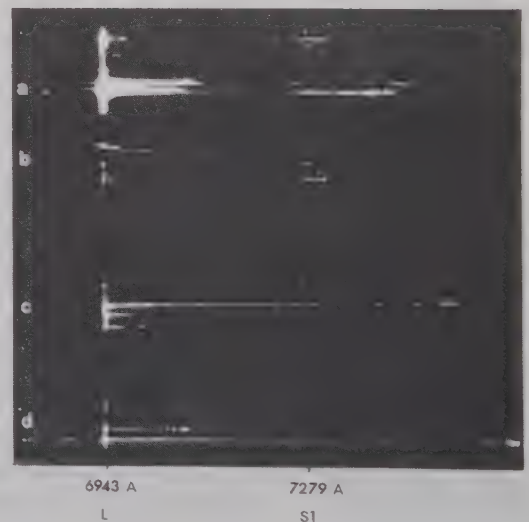


Fig. 12 - Exemples de spectres de filaments obtenus à des niveaux d'excitation décroissant progressivement des cas a à d.

Un dernier genre de spectre assez rarement rencontré est représenté sur la figure 13a. Il se caractérise par la présence d'une structure fine de période bien constante, du type prédit par **Cheung et coll** [30]. On note cependant que cette structure fine disparaît vers l'extrémité du spectre, et que les raies qui la composent sont larges. Nous avons recherché à l'ordinateur le spectre que l'on obtiendrait pour une modulation limitée à deux périodes (en réalité deux impulsions Gaussiennes consécutives). Le champ électrique initial était exprimé sous la forme :

$$E_0 \left[e^{-\left(\frac{t-t_m}{t_p}\right)^2} + e^{-\left(\frac{t+t_m}{t_p}\right)^2} \right],$$

la phase initiale étant supposée nulle. Avec $t_p = 7$ ps, $t_m = 10,5$ ps et $\tau = 4$ ps, le profil d'intensité est représenté sur la figure 14a. Le spectre de la figure 13b correspond à une distance de propagation $z = 2,5$ cm et un δn de $1,3 \cdot 10^{-3}$ [42]. On voit que ce spectre est semblable au spectre expérimental. La seule différence majeure réside dans la régularité des maxima au voisinage de $\lambda = 6943 \text{ \AA}$, mais elle peut s'expliquer par la saturation du film Polaroid utilisé, et la présence d'un fond continu important. Mais on notera surtout la disparition de la structure fine vers les grandes longueurs d'onde ; ceci pourrait avoir pour cause la dissemblance des portions montantes de la courbe de phase sur la première et la deuxième impulsion (fig. 14b). En d'autres termes, chacune des deux impulsions possède son spectre propre, mais ces deux spectres interfèrent en se superposant, donnant lieu à la structure fine dans la partie qui leur est commune.

Fig. 13 - a) Spectre à structure fine d'un type rarement rencontré dans un mélange CS_2 - Benzène.

b) Spectre théorique obtenu par calcul numérique pour une séquence de deux impulsions de 10,5 ps se propageant dans un liquide de 4 ps de temps de relaxation ; distance de propagation $L = 2,5$ cm.

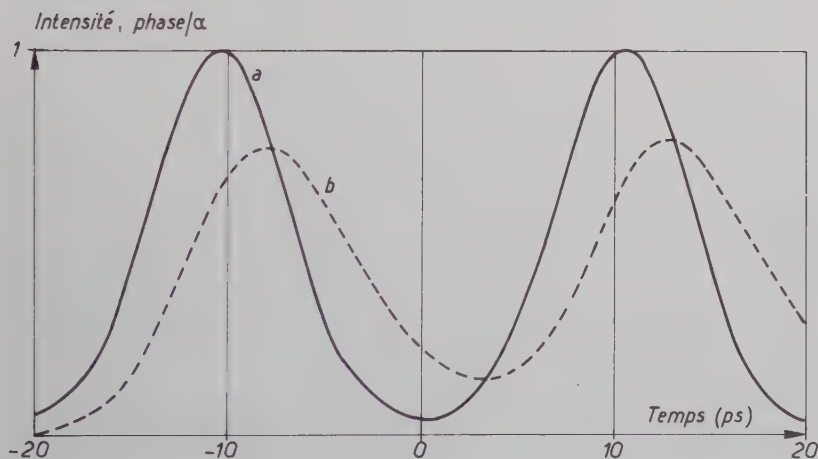
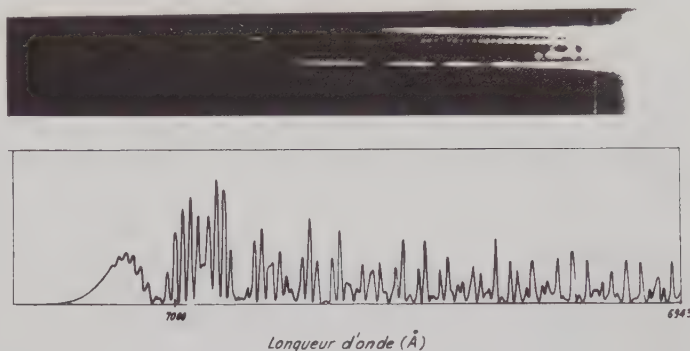


Fig. 14 - COURBE a - Profil normalisé d'intensité du train d'impulsion conduisant au spectre de la figure 13b.

COURBE b - Profil correspondant, normalisé à l'unité, de la courbe de phase montrant la dissymétrie de réponse pour la première et la deuxième impulsion.

Il existe d'autres preuves que dans la majorité des cas les filaments sont produits par une impulsion unique d'environ 10^{-11} s de durée. On sait par exemple que l'énergie d'un filament est de l'ordre de quelques ergs [64], et que la puissance crête est de l'ordre de 10 kW (voir paragraphe III,2.2), ce qui correspond à des durées de quelques 10^{-11} s. Enfin, il n'y a pas de différences fondamentales entre les spectres de filaments obtenus en excitation déclenchée et à modes couplés ; ces considérations sont exposées dans le paragraphe III,3 ainsi qu'un certain nombre de résultats mal compris.

III,2.2. Dépendance linéaire de la self-modulation en fonction de la distance : vérification expérimentale et implications

On sait que l'autofocalisation d'un faisceau lumineux intense dans un milieu dont l'indice dépend de l'intensité est bien comprise [40,58], ainsi que la propagation de la lumière dans un guide d'onde « auto-trappé » [41].

Mais ces théories sont incomplètes car elles ne peuvent rendre compte de la zone focale où s'effectue la transition entre l'autofocalisation et l'autoguidage. **Akhmanov et coll** ont étudié cette zone focale [65] et suggéré que la saturation de l'indice non-linéaire permet une transition entre l'autofocalisation et l'autoguidage. Plus récemment, **Lugovoi et coll** [59-61] ont mis en doute la nature autoguidée des filaments. Ces auteurs s'intéressent à la dynamique de formation de la zone focale. Ils font remarquer que les aberrations conduisent un faisceau qui se focalise à engendrer un certain nombre de foyers alignés [60,62] (il y a un seul foyer en l'absence d'aberrations) dont la position dépend de l'intensité lumineuse. Les fluctuations de cette intensité font se déplacer les foyers ; une vue latérale montre donc des traces rectilignes brillantes, mais qui sont dues au déplacement rectiligne des foyers et non à la présence de filaments trappés stables. Cette hypothèse a pu être vérifiée dans un certain nombre de cas particuliers [66,70], notamment dans le cas de l'excitation par laser monomode [66,67].

L'étude présente fut donc entreprise afin de vérifier la validité de l'équation (III.8) exprimant la dépendance linéaire du développement spectral en fonction de la distance. Cette dépendance une fois démontrée, le caractère autoguidé des « filaments » sera établi ; nous verrons en effet que certains spectres très étalés ne peuvent être produits que sur plusieurs centimètres de propagation.

Dans cette expérience, nous avons perturbé le trajet des faisceaux traversant le liquide de Kerr à l'aide de grilles perforées ou de lames de verre. Les grilles étaient des grilles porte-objet de microscope électronique ; les dimensions des trous sont de $30\ \mu$ ou de $50\ \mu$ et l'intensité transmise est de 25 à 70 % suivant les modèles. On conçoit que seuls les filaments déjà formés ou les faisceaux sur le point de se focaliser puissent franchir des trous d'une telle dimension, tout faisceau de diamètre supérieur à une trentaine de microns étant perturbé par la diffraction ; si l'on n'admet dans la cuve qu'une puissance lumineuse légèrement supérieure au seuil d'autofocalisation (ce qui sera le cas dans notre montage), le faisceau ne peut se refocaliser. Au contraire, une lame de verre de 1 mm d'épaisseur détruit sélectivement les filaments par diffraction (pour un faisceau de $6\ \mu$ de diamètre, la distance de Fresnel d^2/λ correspondant au doublement du diamètre d du faisceau par diffraction est de $60\ \mu$) et laisse passer les faisceaux de diamètre supérieur. Il est donc ainsi possible de détruire dans un plan donné soit les filaments, soit les faisceaux en cours de focalisation.

Le montage était celui de la figure 15. Le laser à rubis multimode, déclenché par prisme tournant, délivrait entre 5 et $20\ \text{MW/cm}^2$. Le diaphragme D, de $300\ \mu$ de diamètre environ, limitait la puissance à une centaine de kilowatts ; il était placé loin de la cuve ($d \approx 50\ \text{cm}$) de façon à atténuer les points chauds du faisceau par diffraction. Chaque impulsion produisait une cinquantaine de filaments dans une cuve de 18 cm de long remplie de CS_2 . Dans le cas où une grille était introduite, on prenait soin de masquer sa figure de diffraction dans le plan focal image de la lentille (la bille étant remplacée par un écran en forme de croix).

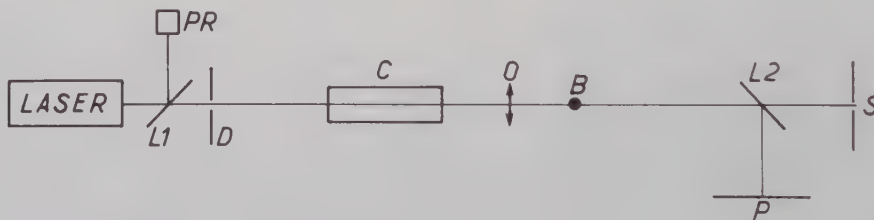


Fig. 15 - Schéma de montage de l'installation de visualisation des filaments. La lame L_1 détourne quelques pourcents d'énergie vers le photodétecteur rapide PR. Un diaphragme D, de diamètre compris entre $200\ \mu$ et 1 mm limite l'énergie incidente sur la cuve C contenant le liquide de Kerr. La lentille O image la face interne de la fenêtre de sortie de la cuve C sur une plaque photographique P (Kodak IN ou polaroid type 47) et la fente d'entrée d'un spectrographe S (dispersion moyenne 10 Å/mm), la lame L_2 de faible réflexion (5 %) servant à dédoubler le faisceau. Le spectrographe accepte les plaques IN et le film polaroid infrarouge type 413. La bille de roulement B (diamètre 1 mm) élimine la lumière non trappée dans le plan focal image de O.

Un certain nombre d'expériences préliminaires ont été effectuées. Après insertion d'une grille de $30\ \mu$, on observait encore des points brillants de $6\ \mu$ de diamètre, pourvu que la distance d entre la grille et la fenêtre de sortie ne dépassât pas 2 cm (pour $d = 2,5\ \text{cm}$, nous n'avons pu en observer). Tous présentaient des étalements spectraux importants, sauf dans le cas où d était petit. Un résultat contraire était obtenu avec la lame de verre : pour une distance d de 1,3 cm, le nombre des filaments tombait d'un facteur 3 et leurs spectres étaient peu étalés. Un examen plus détaillé est cependant nécessaire. On peut en effet arguer qu'un faisceau peut toujours se focaliser derrière la grille, suivant les maxima de la figure de diffraction notamment, et que les

perturbations apportées par la lame de verre à des faisceaux en cours de focalisation peuvent suffire à réduire le nombre de foyers.

C'est pourquoi nous avons recherché une corrélation entre l'étalement spectral et le paramètre d , distance entre la fenêtre de sortie et la lame de verre ou la grille. L'étalement spectral s'écrit

$$\delta\omega = \omega_s k l (n_2 \mathcal{A}_0^2 / n_0)$$

où ω_s est la largeur spectrale initiale (en $z=0$, avec $\varphi=0$) de l'impulsion,

k est le nombre d'onde,

l la distance de propagation et

n_2 la constante de Kerr optique.

Notons ici que le changement d'indice $\delta n = n_2 \mathcal{A}_0^2$ est beaucoup plus petit dans les zones d'auto-focalisation que dans les zones focales proprement dites ou les filaments. C'est-à-dire que les étalements spectraux sont produits pour l'essentiel dans les zones focales ou les filaments : on observe en effet des filaments sans étalement spectral, ce qui exclut que les zones d'auto-focalisation contribuent appréciablement. Nous savons en outre que l'intensité dans ces zones focales ou filaments est constante [71] à un facteur 2 près pour le même liquide. La grandeur sans dimension $\delta\omega/2\omega_s$ doit donc dépendre linéairement de l et doit atteindre sa valeur maximum (plusieurs milliers de cm^{-1} observés expérimentalement) en l'espace de quelques centimètres s'il s'agit de filaments, mais seulement de 1 mm si l'on croit la théorie des foyers mobiles [59-61] (la longueur des foyers étant estimée à 1/200 de la longueur de la cuve [61]).

L'expérience de la grille a donc été reprise, mais avec des trous de 50μ au lieu de 30 . Ceci permet d'occulter une plus faible fraction du faisceau incident, donc d'augmenter le nombre de filaments ; la grille à 30μ transmet seulement 25 % de la lumière, contre 70 % pour celle à 50μ . Pour une position donnée de la grille, on mesurait l'étalement total $\delta\omega$ et la « fréquence de modulation » ω_s de chaque filament sachant que la période de deux maxima adjacents est de $2\omega_s$ au voisinage de $\lambda = 6943 \text{ \AA}$ (voir paragraphe III, 1.1 et [30]). Seule la valeur minimale de $\delta\omega/2\omega_s$ était retenue, ce qui permettait de sélectionner la distance de propagation la plus courte. La courbe $(\delta\omega/2\omega_s)$ minimum en fonction de d est représentée sur la figure 16. Le laser était opéré au voisinage de son seuil ; à des niveaux plus élevés, la courbe se trouvait translatée vers la droite. Au delà de $d = 4 \text{ cm}$, on n'observait plus de foyers ou filaments. Leur petit nombre pour les grandes valeurs de d est d'ailleurs responsable de l'imprécision de la courbe. Enfin, l'examen de cette courbe montre que l'on peut trouver des étalements spectraux nuls pour $d = 12 \text{ mm}$; ceci indique que des foyers ou filaments peuvent se former jusqu'à 12 mm derrière la grille ; au delà, ce n'est plus possible. Donc seuls les filaments peuvent se propager jusqu'à la fenêtre de sortie dans le cas où d est supérieur à 12 mm, (car les foyers seraient trop courts), et leur distance de propagation est au minimum de $d - 12 \text{ mm}$.

Pour l'expérience de la lame de verre, c'est la valeur maximale de $\delta\omega/2\omega_s$ que nous avons portée en fonction de d (fig. 17 courbe a). Les points se distribuent le long d'une droite dont la pente est comparable à celle de la figure 16. Il y a une dis-

tance minimum d_0 pour laquelle on ne voit aucun filament sur la fenêtre de sortie. La cause en est que la diffraction dans la lame de verre perturbe la focalisation des faisceaux d'un diamètre inférieur à 50μ environ et qui auraient pu se focaliser plus près que d_0 . Du fait de la rareté des filaments les plus longs, l'incerti-

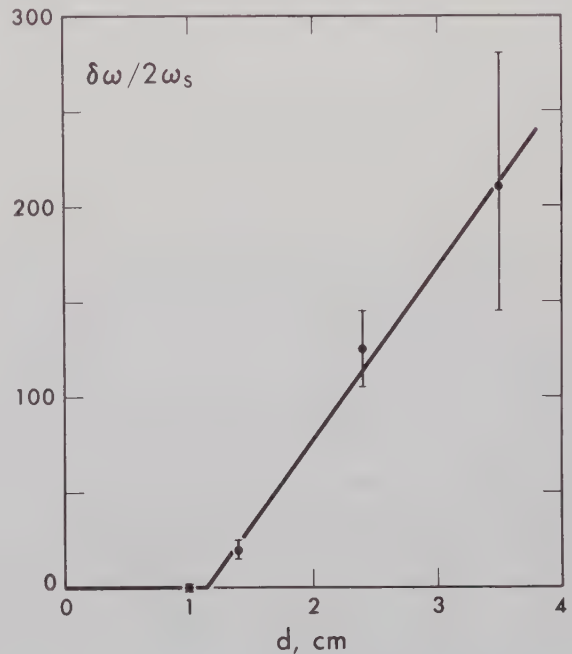


Fig. 16 - Valeur minimale de $\delta\omega/2\omega_s$ en fonction de la position d'une grille à trous de 50μ . La valeur minimale est choisie sur un certain nombre de filaments pour chaque position de grille. L'incertitude sur $\delta\omega/2\omega_s$ a plusieurs causes : la nécessité de placer un masque en forme de croix dans le plan focal image de la lentille O brouille les images des filaments sur le spectrographe (les spectres deviennent ainsi difficilement lisibles) ; par ailleurs, il y a peu de filaments pour les grandes valeurs de d , ce qui rend les statistiques difficiles.

tude est plus importante pour les grandes valeurs de d . C'est d'ailleurs pour cette raison qu'il a fallu examiner un très grand nombre de filaments pour trouver le maximum de 280 pour $\delta\omega/2\omega_s$ (en l'absence de lame de verre). Le maximum correspond à une distance de propagation de 5 cm. Il est possible que des filaments plus longs puissent être observés dans des cuves de longueur différente.

On obtient des résultats semblables dans le toluène (fig. 17 courbe b). L'effet Raman stimulé, plus prononcé que dans CS_2 , ne permet pas de tracer toute la courbe.

La pente de la courbe a, figure 17 est de 57/cm ; on en déduit un changement d'indice non-linéaire pour les filaments dans CS_2 de $1,3 \cdot 10^{-3}$, en accord avec les mesures récentes de Shimizu et Stoicheff [44]. Dans la théorie de l'autoguidage [41], cette grandeur est reliée au diamètre du filament, mais les coefficients numériques sont approchés. Afin d'établir une formule plus précise examinons brièvement les résultats de différents auteurs.

Si l'on suppose que les filaments possèdent une distribution radiale d'intensité rectangulaire, on trouve [41] (attention au facteur 2 omis par les auteurs dans l'expression de l'angle de diffraction), pour une distribution rectangulaire de l'intensité :

$$(III.12) \quad D = \frac{0,61}{\sqrt{2}} \frac{\lambda}{(n\delta n)^{1/2}} \approx 0,43 \frac{\lambda}{(n\delta n)^{1/2}}$$

où n est l'indice du matériau et δn le changement d'indice non-linéaire dans le filament. En réalité, la distribution d'intensité [31,57] se rapproche beaucoup plus d'une gaussienne. On sait d'autre part [31,57] que tous les filaments produits dans un même liquide par des impulsions déclenchées ont à 30 % près le même diamètre ; or, ceci ne s'explique raisonnablement que par un mécanisme de saturation qui bloque le changement d'indice δn à une certaine valeur δn_{max} dans tous les filaments (faute de quoi le diamètre n'est pas stable). Les calculs numériques de filaments stables de

Gustafson et coll [57] permettent de tirer une formule empirique plus précise. Choissant un exemple numérique dans lequel la saturation d'indice est à peine atteinte au centre du filament, de façon que la distribution d'intensité reste sensiblement Gaussienne, on a pour $\delta n = 0,58$ un diamètre $d = 0,23 \mu$ (la puissance dans le filament est de 17,8 kW, peu supérieure à la puissance critique de 12,5 kW). Ces valeurs font donc préférer la formule :

$$(III.13) \quad D = 0,32 \frac{\lambda}{(n\delta n)^{1/2}}.$$

Portant dans (III.13) la valeur de δn mesurée, on trouve un diamètre de 5μ pour les filaments dans CS_2 . Ceci est en excellent accord avec les mesures directes [64]. D'autre part, prenant $n_2 = 1,3 \cdot 10^{-11}$ ues [72], on trouve pour le champ électrique une valeur de $3 \cdot 10^6$ V/cm ; c'est une limite inférieure si l'on admet qu'il y a saturation de l'indice, et des valeurs de l'ordre de $5 \cdot 10^6$ V/cm semblent plus près de la réalité. Pour le toluène, on déduit un diamètre de 9μ par la formule (III.13), en excellent accord avec l'observation directe.

En conclusion, nous avons vérifié la loi de dépendance linéaire de la modulation de phase en fonction de la distance de propagation. Deux résultats importants en découlent :

1°) L'existence de filaments autoguidés dans nos conditions expérimentales est clairement établie. Ceci n'est pas en contradiction avec les résultats de Loy et Shen [66], Manenkov [69] et Korobkin et coll [67]. Ces auteurs se sont surtout attachés à démontrer la théorie des foyers mouvants [60-61], en suivant la progression de ces derniers au sein du matériau pour des impulsions de forme gaussienne, ou au contraire en notant qu'ils restent fixes pour des impulsions rectangulaires [69]. Mais si l'on peut attribuer au déplacement

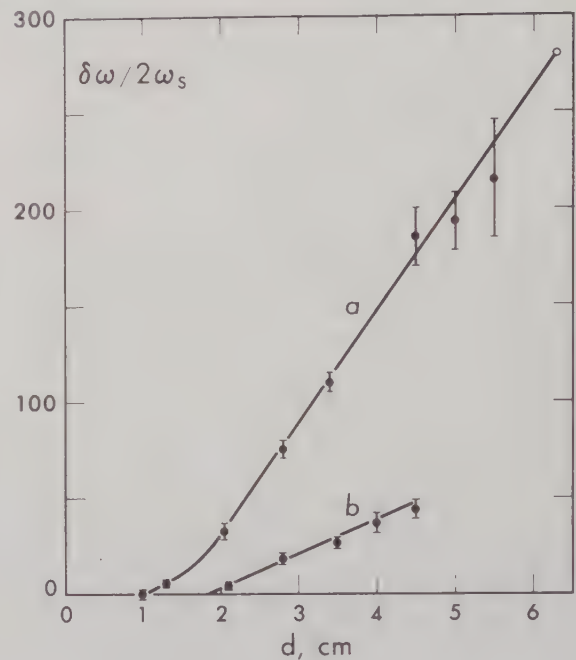


Fig. 17 - Valeur maximale de $\delta\omega/2\omega_s$ en fonction de la position d'une lame de verre de 3 mm.

a) CS_2

b) Toluène

Le plus grand shift $\delta\omega/2\omega_s$ observé dans notre cuve de 18 cm de long (en l'absence de lame de verre) est de 280, ce qui correspond (cercle) à une distance de propagation de 5,4 cm ; une mesure analogue est impossible dans le Toluène, car l'effet Raman stimulé rend les spectres semblables à ceux de la figure 12a et en interdit une lecture précise.

rectiligne des foyers les destructions filamenteuses dans les solides [67,68] et les traces brillantes observées par côté dans les liquides, cela n'implique pas que les filaments ne puissent exister. Il se peut d'ailleurs que les conditions d'excitation monomode soient défavorables aux filaments. Nous discuterons au paragraphe suivant les implications de cette situation expérimentale.

- 2°) Nous avons estimé le changement d'indice dans les filaments ; cette mesure est en bon accord avec ce que l'on peut calculer à partir du diamètre. Mais nous avons vu que le problème de la stabilité reste entier, et que d'autres expériences sont nécessaires pour comprendre les causes de saturation d'indice [73]. Notons dans ce contexte que la durée des impulsions peut avoir sur leur propagation des effets semblables à la saturation [85], dès qu'elle devient comparable au temps de relaxation d'orientation (c'est le cas ici).

III,2.3. Filaments en impulsions brèves

a) construction d'un laser à rubis à modes couplés

Ce laser fut construit afin d'étudier le comportement des filaments en fonction de la durée des impulsions d'excitation.

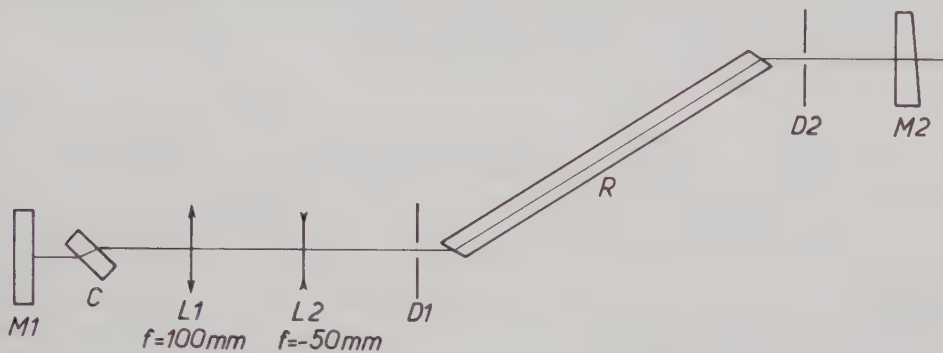


Fig. 18 - Schéma d'un laser à rubis à modes couplés : M1, M2 miroirs à 100 % et 50 % de réflexion (M2 prismatique), L1, L2 lentilles constituant le télescope, D1, D2 diaphragmes effectuant la sélection de modes transverses, R rubis taillé pour incidence de Brewster.

Nous nous sommes inspirés des remarques de M. Mack [74]. Le rubis taillé à l'angle de Brewster, d'un diamètre de 16 mm et d'une longueur de 20 cm est pompé par deux lampes flash linéaires, le tout refroidi par air. Le montage de la cavité optique est standard (fig. 18), si l'on excepte le télescope constitué d'une lentille plan-convexe de 100 mm de focale et d'une lentille plan-concave de 50 mm de focale. Le but d'un tel télescope est double : la densité d'énergie au niveau du miroir 99 % étant divisée par un facteur 4, le problème de la tenue du miroir ne se pose plus ; enfin, on peut compenser l'effet de lentille thermique du rubis en jouant sur le tirage.

Il est très important d'éviter les réflexions parasites sur les diverses surfaces optiques : la cuve contenant l'absorbant saturable est ainsi placée à l'angle de Brewster, tandis que les lentilles du télescope sont traitées antireflet. Le fonctionnement le plus satisfaisant est obtenu pour un écartement maximum entre le télescope et le rubis.

Deux diaphragmes de 3 mm de diamètre, placés de part et d'autre du rubis assurent une sélection de modes transverses. Ceci est nécessaire car toute la section du rubis n'est pas pompée de façon homogène. La tête peut d'autre part être translatée transversalement au cas où des brûlures endommageraient les faces du rubis, ce qui permet de choisir une nouvelle portion de rubis exempte de fractures et piqûres. De même pour le miroir de sortie, que l'on peut translater sans avoir à retoucher l'alignement de la cavité.

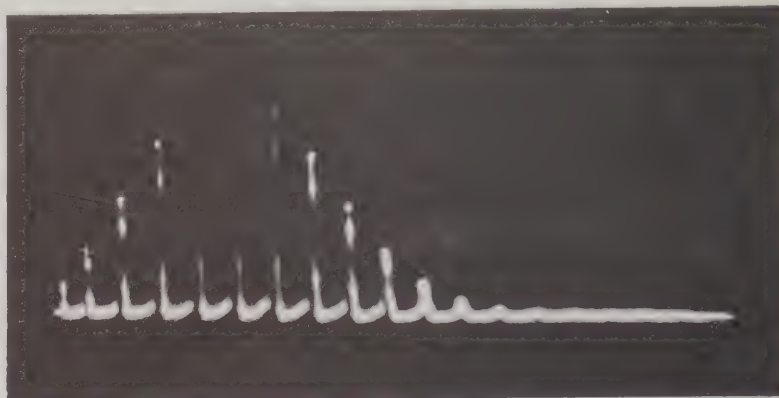
Les traitements antireflets sur les lentilles et de 50 % de réflexion sur le miroir de sortie se composent de 3 couches $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ évaporées au canon à électrons. Les lentilles résistent parfaitement. Le traitement du miroir de sortie possède une bonne tenue aux impulsions brèves, mais brûle sous l'action d'impulsions déclenchées. Le miroir 99 % est un miroir type « high field damage » de Perkin-Elmer.

Nous avons utilisé la cryptocyanine et l'iodure de 1,1' - diéthyl - 2,2' - dicarbocyanine (DDI) comme absorbants saturables. Les meilleurs solvants sont l'alcool méthylique pour le premier et l'acétone pour le second. Les résultats sont semblables avec les deux colorants.

Les traces d'absorption à deux photons (diphényl-anthracène en solution dans le benzène) permettent d'estimer la qualité du couplage de modes ; ces résultats sont confirmés par la forme du train d'impulsions observé

avec un photodétecteur à temps de montée inférieur à 0,3 ns et un oscilloscope type Tektronix 519. Lorsque l'énergie de pompage est voisine du seuil, le fonctionnement s'avère très reproductible. La figure 19 représente un train d'impulsions typique. Les puissances crête atteintes sont de l'ordre du gigawatt. A 10% au-dessus du seuil, on constate la présence de plusieurs trains intercalés, les impulsions se rallongent et les miroirs brûlent.

Fig. 19 - Train d'impulsions émises par un laser à rubis à modes couplés. Les impulsions sont espacées de 7 ns, et se composent chacune d'un groupe de deux ou trois impulsions dues probablement à des réflexions parasites sur les lentilles du télescope.



b) montage pour l'étude des filaments

Ce montage est représenté sur la figure 15. Un diaphragme iris réglable limite la puissance admise dans la cuve. Il est placé à bonne distance de cette cuve de façon à atténuer par diffraction les discontinuités de distribution d'intensité dues aux points chauds du faisceau pénétrant dans la cuve. On donne à ce diaphragme le diamètre minimum compatible avec la formation des filaments. Des cuves de longueur comprise entre 7 et 30 cm sont utilisées.

Une lentille achromatique de 10 cm de distance focale conjugue la face interne de la fenêtre de sortie de la cuve avec les plans du film photographique et de la fente d'entrée du spectrographe, une lame de verre épaisse servant à dédoubler le faisceau. On peut ainsi simultanément photographier les filaments et en prendre les spectres. Deux fils parallèles forment masque devant la plaque photographique ; ils encadrent l'image de la fente du spectrographe à travers la lame de verre et permettent ainsi l'identification précise des filaments dont les spectres sont donnés par le spectrographe. Nous notons enfin la bille de roulement (diamètre ≈ 1 mm) placée au foyer image de la lentille et qui sert à bloquer la lumière non «trappée» ; cette bille n'arrête que quelques pourcents de la lumière diffractée par les filaments.

c) observations comparées entre les filaments obtenus en excitation déclenchée et à modes couplés

Brewer et Lee notèrent en 1968 que le diamètre des filaments dans le nitrobenzène diminue de moitié dans le cas de l'excitation par un laser à modes couplés [49]. Une étude systématique du diamètre des filaments et de leur spectre nous a permis de mieux caractériser ce résultat et de vérifier que l'effet est aussi présent dans CS_2 et le toluène.

La durée des filaments est obtenue grâce à leur spectre (chap. III,1), le diamètre étant mesuré directement. La mesure de durée est entachée d'une erreur de 20 à 30 %, celle du diamètre de 10 à 15 %. La courbe diamètre/durée pour le nitrobenzène est représentée sur la figure 20 ; c'est une moyenne prise sur un grand nombre d'échantillons. On y distingue trois zones suivant les modes de fonctionnement du laser : déclenché, «mode locking», et «mode locking» imparfait.

Le cas «déclenché» se caractérise par un grand nombre de filaments intenses de grand diamètre fréquemment entourés d'un anneau de 20 à 25 μ de diamètre (mode de propagation supérieur) [75]. Parfois, pour un même filament, deux spectre de développement inégal sont superposés, indiquant que deux impulsions se sont succédées dans le même guide d'onde, séparées par des temps longs devant leur propre durée. Enfin, ces filaments sont observés pour des longueurs de cuve comprises entre 12 et 30 cm au moins (nous n'avions pas de cuves de longueur supérieure à 30 cm).

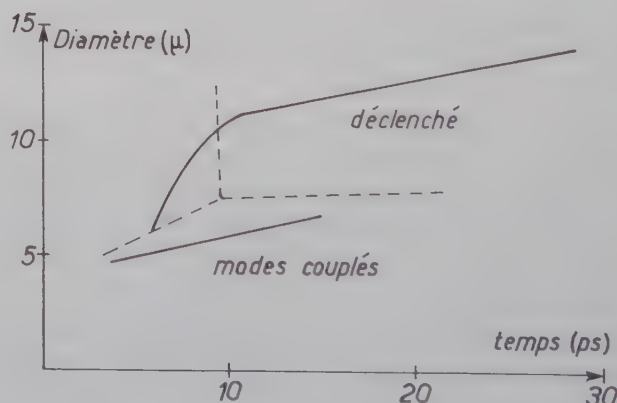


Fig. 20 - Courbe moyenne diamètre/durée pour les filaments dans le nitrobenzène.

Dans le cas où le couplage de modes est parfait, les filaments sont peu nombreux ; il est impossible de les observer dans des cuves de plus de 10 cm de long, contrairement aux observations de **Carman et coll** [18]. Contrairement à l'observation de **Brewer et Lee** [49], l'effet Raman demeure très intense quelle que soit la durée des impulsions. Mais surtout les diamètres sont compris entre 4 et 6 μ avec semble-t-il une légère dépendance en fonction de la durée. Aucun anneau de mode supérieur n'est observé ; enfin, le développement spectral (voir paragraphe 2) indique clairement que les distances de propagation sont très courtes (quelques millimètres au plus). Il est important de noter que deux filaments de même durée auront des diamètres différents suivant l'excitation utilisée (déclenchée ou modes couplés).

Le sulfure de carbone et le toluène se comportent de façon identique. On voit sur la figure 21 une photo de filaments dans CS_2 , et les spectres correspondants. On note les petits diamètres ($\leq 3 \mu$) et les spectres, remarquables par la faible extension de la modulation de phase (comparer avec la fig. 12) et l'intensité des ordres de Stokes successifs ; enfin, on voit aussi bien à 6943 Å qu'aux longueurs d'ondes Stokes un étalement spectral important de la lumière non trappée, probablement par diffusion Rayleigh stimulée [77] (stimulated Rayleigh wing scattering). Dans certains cas, un étalement d'une centaine de cm^{-1} est observé.

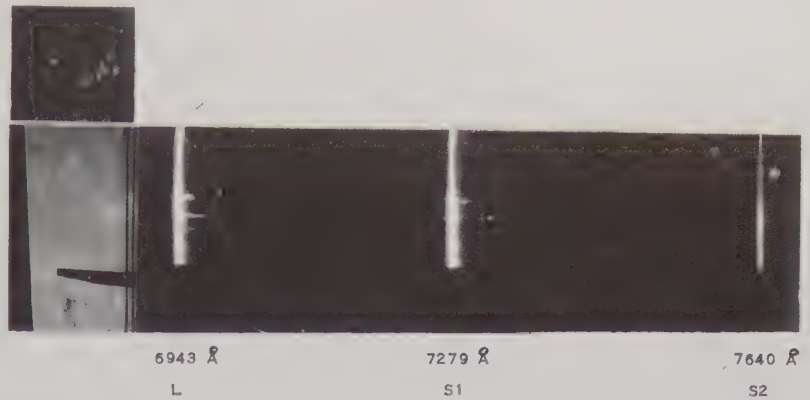


Fig. 21 - Photographie de filaments dans CS_2 et spectres correspondants, pris à l'aide du montage de la figure 22, avec un laser à modes couplés. A titre de comparaison, des filaments obtenus avec un laser déclenché sont représentés au même grandissement (≈ 20) dans le cadre supérieur. Notons que le système optique introduit une erreur d'environ 30 % sur le diamètre, le diamètre réel étant $\sqrt{2}$ fois plus petit que celui mesuré [76].

Nous n'avons pu mettre en évidence une dépendance de la durée des filaments en fonction du colorant utilisé pour le couplage de modes. On pouvait penser que le DDI donnerait en moyenne des impulsions plus brèves que la cryptocyanine [74]. En fait, l'une et l'autre donnent des filaments de durée comprise entre 4 et 15 ps. D'autre part, lorsque le couplage de modes est imparfait, il est fréquent d'observer simultanément des filaments de grand et de petit diamètre.

Enfin, nous avons repris les expériences précédentes avec un laser à verre au néodyme. Nous avons obtenu les mêmes changements de diamètre pour les trois liquides suivant le mode de fonctionnement du laser.

III,3. Conclusions

Si la distorsion d'enveloppe reste un phénomène jusqu'à présent inaccessible à l'expérience, la modulation de phase est par contre d'observation aisée et s'avère un instrument efficace de caractérisation des filaments autoguidés dans les liquides de Kerr. En particulier, elle fournit une mesure de la durée de ces filaments. Elle permet également d'en mesurer la longueur, ou, plus exactement, la distance de propagation. Il ressort de ces mesures que les filaments sont formés par des impulsions brèves, même lorsqu'il est fait usage d'un laser déclenché.

III,3.1. Durée des filaments

Les spectres de modulation de phase semblent indiquer que la quasi totalité des filaments sont produits par des impulsions brèves, de durées comprises entre 5 et 20 picosecondes, que la source soit un laser déclenché ou un laser à modes couplés. Le résultat apparaît surprenant pour le laser déclenché, dont l'émission ne présente pas de structure aussi courte en général (l'analyse spectrale au Fabry-Perot révèle 4 ou 5 modes). Il faut donc en conclure que de telles impulsions sont formées dans le liquide. Deux mécanismes peuvent en être responsables. **Marburger et Wagner** [78] ont montré qu'une impulsion se raccourcit au cours de sa focalisation, la durée minimale possible étant de l'ordre du temps de relaxation d'orientation. D'un autre côté, les processus de diffusion stimulée par exemple l'effet Brillouin stimulé qui réfléchit l'énergie vers l'arrière, peuvent écourter l'impulsion dans le filament, ce raccourcissement continuant jusqu'à ce que le gain tombe assez bas pour mettre fin aux pertes. Le gain Brillouin a un caractère transitoire [12,79]. L'exposant de gain transitoire est donné [55] par :

$$G = (2 g_0 v_0 / \tau')^{1/2} t_p ,$$

où g_0 est le gain par unité de longueur, en régime permanent,

τ' le temps de relaxation du phonon,

v_0 la vitesse de la lumière

et t_p la durée de l'impulsion.

Notons que g_0 étant proportionnel à τ' , G ne dépend pas de τ' . Dans les filaments, $g_0 \approx 10^4 \text{ cm}^{-1}$, $\tau' \approx 10^{-9} \text{ s}$; supposant $G < 20$ pour que l'instabilité ne puisse se développer suffisamment à partir des photons Brillouin spontanés, on trouve $t < 25 \text{ ps}$. L'effet Raman conduit à un résultat semblable [80]: on a [80]:

$$t_p < \frac{2}{v_0 g_0} \log \frac{I}{a}$$

où I est l'intensité et a le niveau de bruit (un photon/ cm^3) dans le mode Stokes; avec $g_0 \approx 100 \text{ cm}^{-1}$ [81] et $I = 20 \text{ GW/cm}^2$ on trouve aussi $t_p < 25 \text{ ps}$ dans les filaments.

III,3.2. Processus moléculaires

Nous avons noté (paragraphe 2) qu'il est très vraisemblable que les diamètres des filaments soient fixés par la valeur $\delta n_{\max}$ que peut prendre le changement d'indice non-linéaire au centre des filaments. Que les diamètres changent lorsque l'excitation est différente (impulsions à modes couplés par exemple) semble donc impliquer que cette valeur de $\delta n_{\max}$ est fonction des conditions d'excitation. Nous envisagerons deux causes possibles de cette dépendance de $\delta n_{\max}$ en fonction des conditions d'excitation:

- la première due à l'influence de termes jusqu'alors négligés dans les calculs de susceptibilité Kerr d'orientation et qui peuvent devenir importants aux fortes intensités;
- la seconde étant liée au mécanisme de saturation proprement dit; cette saturation est en effet mal comprise, d'autant plus qu'elle semble se produire à des niveaux très inférieurs à ce que laisse prévoir la théorie de l'effet Kerr d'orientation.

a) autres causes de non-linéarité

L'augmentation de susceptibilité ne peut se faire que par l'intervention de mécanismes apparaissant à forte intensité: distorsion électronique [49] et association moléculaire [82] par exemple; car l'effet Kerr orientationnel contribue autant en déclenché et couplage de modes, étant donné que la durée des filaments est dans les deux cas sensiblement égale, et qu'elle est de toutes façons plus longue que le temps de relaxation d'orientation (sauf dans le nitrobenzène, dont le temps de 50 ps est un peu plus long). La distorsion électronique et l'association moléculaire semblent seules responsables de l'autoguidage des impulsions brèves dans les substances vitreuses et les liquides dont les molécules sont de polarisabilité isotrope comme le tétrachlorure de carbone [49] ou l'argon [83]. Il semble logique de supposer qu'elles sont aussi présentes dans les trois liquides étudiés. Si tel était le cas, puisque les diamètres sont divisés par 2 et sachant que le diamètre des filaments varie en $1/\sqrt{\delta n}$, la saturation d'indice se manifesterait pour des valeurs de δn quadruples de $\delta n_{\max}$ pour l'effet Kerr. Un calcul d'ordre de grandeur est possible pour CS_2 par exemple. Ainsi, si l'on prend pour n_2 la valeur admise dans la théorie de l'effet Kerr de $1,3 \cdot 10^{-11}$ ues, le champ électrique doit atteindre environ 10^7 V/cm , ce qui correspond à une intensité minimum de 250 GW/cm^2 dans les filaments; cette estimation ne tient en effet pas compte de la saturation et suppose que n_2 conserve une valeur égale à celle de l'effet Kerr. Les effets Brillouin et Raman stimulés limitent très probablement la puissance dans les filaments par réflexion et dissipation thermique. Ceci devrait suffire à limiter l'intensité, donc à stabiliser les diamètres des filaments, pour peu que la courbe de δn en fonction de E^2 ait une concavité tournée vers le bas. Cette limitation de puissance se faisant d'autant moins sentir que l'impulsion est plus brève (gain transitoire des effets stimulés précédemment discutés), la pente positive des courbes de la figure 20 se trouverait ainsi expliquée.

b) causes de saturation

Examinons maintenant une cause possible de saturation de δn . Il est raisonnable de penser que δn se sature à des valeurs de l'ordre de 10^{-3} dans CS_2 au lieu de 0,6 (voir en III,2.2.). C'est donc que l'alignement complet des molécules parallèlement au champ électrique est interdit, probablement parce qu'il existe une force de rappel dont il n'a pas été tenu compte dans [31]. On sait en effet qu'il existe un ordre local au sein des liquides [46,84] et que dans CS_2 au repos, les axes de deux molécules voisines tendent à s'orienter dans des directions perpendiculaires. L'impression d'un champ électrique intense impose un ordre différent du précédent; les molécules n'étant pas sphériques, il correspond à cet ordre un volume spécifique diffé-

rent, probablement plus grand. Précisons que ce phénomène est distinct de l'électrostriction, et de la redistribution moléculaire proposée par **Hellwarth** [82], pour laquelle la géométrie de la molécule n'a pas été considérée. Pas plus l'électrostriction que la redistribution moléculaire ou l'effet que nous considérons n'ont le temps d'imposer de déplacement macroscopique de matière pendant les 10^{-11} secondes environ que durent les impulsions. Les distances intermoléculaires moyennes restent donc essentiellement constantes. En d'autres termes, toute rotation moléculaire qui contrarierait l'ordre orientationnel local serait rapidement bloquée, le liquide ne pouvant se dilater librement.

Le couple de rappel exercé dépend de nombreux facteurs, notamment de l'interaction entre les molécules voisines, et de leur géométrie. Considérons une molécule au milieu de la cage formée par ses premières voisines ; ses rotations peuvent être bloquées de deux façons :

- Si la cage est elle-même très rigide ; c'est par exemple le cas d'un corps près du point de solidification. Le couple de rappel ne dépend alors pratiquement pas de l'influence du champ appliqué sur les molécules de la cage. Un groupe de molécules liées ainsi plus ou moins rigidement s'appelle groupe cybotactique (pour une discussion, voir par exemple [46], chapitres III et V). Précisons que **Gustafson et coll** [57] n'ont pas tenu compte de cette possibilité dans leurs calculs de saturation.
- Si les molécules de la cage, supposées libres de tourner (liquide peu visqueux ou près du point d'ébullition par exemple) subissent sous l'action du champ une rotation qui limite les déplacements de la molécule centrale par manque d'espace. Le couple de rappel est ici déterminé par la partie répulsive du potentiel d'interaction de deux molécules venant en butée l'un contre l'autre.

Ajoutons une proposition de **Fleck et Kelley** [58], reprise récemment par **Shimizu** [85], selon laquelle le temps fini de relaxation du liquide -qui impose d'ailleurs une limite inférieure au raccourcissement des impulsions qui se focalisent [78]- est aussi responsable d'effets très comparables à la saturation d'indice. En effet, plus l'impulsion se raccourcit au cours de sa focalisation, moins le milieu répond ; la focalisation catastrophique est ainsi évitée. Le foyer se présente alors comme une zone allongée, possédant un diamètre constant sur une distance grande devant la distance de Fresnel. Cependant, il semble que le diamètre dépende des conditions initiales et que la longueur de la zone focale n'atteigne pas les valeurs de plusieurs centimètres que nous avons mesurées.

III,3.3. Dynamique de la propagation

On sait qu'en régime stationnaire, la distance d'autofocalisation d'un faisceau dans un liquide de Kerr est inversement proportionnelle à la racine carrée de la puissance. Cette distance est donnée par [40]

$$z_f \approx \frac{n_0 r^2}{2} \sqrt{\frac{n_0 c}{2 \epsilon_2 p}}$$

où r est le rayon initial du faisceau et p la puissance. Si la puissance varie, la zone focale se déplace. Il y a un seul foyer de présent à tout instant dans la cuve si les fluctuations de puissance sont lentes ; mais si par exemple l'impulsion optique a une longueur $c t_p$ inférieure à celle de la cuve contenant le liquide, deux foyers seront simultanément présents en général [86]. Ceci apparaît sur l'exemple de la figure 22 où sont portés les instants de passage normalisés $Y = v_0 t_f / Z_f$ en fonction de la position normalisée z_f / Z_f .

$$z_f / Z_f \cdot$$

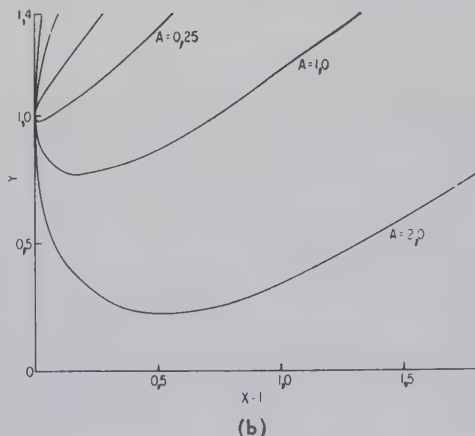
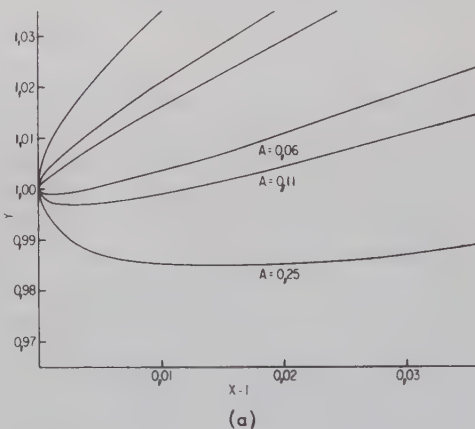
Fig. 22 - Trajectoire des points focaux d'une impulsion Gaussienne tombant sur un milieu dont l'indice dépend de l'intensité. Ce sont les courbes (voir [86] pour le calcul) :

$$Y = \pm v_0 t_p / Z_f (\ln X)^{1/2} + X,$$

avec $X = z_f / Z_f$ et $Y = v_0 t_f / Z_f$. Le minimum est au point

$$z_f = Z_f + \frac{(v_0 t_p)^2}{4 Z_f}$$

Pour une impulsion de 300 ps, avec $Z_f = 10$ cm, $z_f - Z_f \approx 2$ cm.



La largeur $1/e$ de l'impulsion Gaussienne est $\sqrt{2} t_p v_0$, v_0 est la vitesse de la lumière dans le milieu, et Z_f la distance focale minimum. Le paramètre A vaut $v_0 t_p / Z_f$. On voit que pour une impulsion de 0,3 ns, ce qui correspond sensiblement à $A = 1$ sur la figure 22 si l'on choisit $Z_f = 10$ cm, le point à tangente horizontale (correspondant à l'apparition du premier foyer) est en $z_f \approx Z_f + 2$ cm. Ce premier foyer se décompose par la suite en deux foyers, l'un s'éloignant à l'infini, l'autre se rapprochant jusqu'au minimum en Z_f puis s'en allant à l'infini. Bien entendu, la distance entre les deux foyers reste inférieure ou égale à la largeur totale de l'impulsion.

Eu égard aux intensités élevées dans chacune de ces zones focales, les diffusions Brillouin et Raman stimulées peuvent y prendre place, pourvu que le temps d'interaction de la lumière avec les molécules soit suffisamment long. Donc, si les foyers se déplacent trop vite, ils n'excitent pas le milieu et la lumière poursuit sa trajectoire sans perturbation. Au contraire, sur la portion de trajectoire voisine du point à tangente verticale, le déplacement est lent. Là, l'effet Brillouin stimulé est en mesure de prendre naissance en un temps de quelques dizaines de picosecondes [55] et d'interrompre le faisceau optique en en réfléchissant la plus grande partie vers l'arrière. De même pour l'effet Raman, mais avec des temps plus courts et une efficacité moindre. Ceci peut expliquer pourquoi un laser déclenché monomode fabrique peu ou pas de filaments [66] : les diffusions Brillouin et Raman stimulées sont présentes de façon quasi permanente car elles peuvent accompagner le foyer dans ses mouvements. En revanche, un laser multimode possède des fluctuations rapides d'intensité par suite du battement entre les divers modes ; ceci imprime aux foyers une oscillation rapide, qui permet à une certaine partie de la lumière d'esquiver le miroir constitué par le réseau Brillouin.

Cette analyse du mouvement des foyers permet donc de dégager une première condition nécessaire à la formation des filaments. Une seconde difficulté subsiste. Il reste en effet à comprendre pourquoi la lumière qui se dirige vers l'axe change de course et, au lieu de rediverger après avoir traversé la zone focale, se propage sous forme d'ondes planes guidées dans un filament. Ceci est illustré sur la figure 23, où se trouve tracée la trajectoire d'un rayon lumineux depuis son entrée dans le liquide jusqu'au début de sa propagation en filament. Le faisceau incident est supposé parallèle. Seule la présence d'un point d'inflexion permet de raccorder les deux portions de courbe (autofocalisation et autoguidage). Or, dans un modèle simple de susceptibilité non-linéaire

$$\delta n = n_2 E^2,$$

l'angle des rayons avec l'axe augmente de façon monotone jusqu'à intersection avec l'axe si la puissance est supérieure à la puissance critique. L'inflexion ne sera possible que si δn est saturable (cette condition est d'ailleurs aussi la condition de stabilité des filaments [57]), ou dans certaines conditions très précises de puissance pour des faisceaux faiblement convergents [58,87]. La saturation a été discutée en détail par **Akhmanov et coll** [65] et **Marburger et Dawes** [62] pour le cas du régime permanent et dans l'hypothèse où il n'y a pas de diffusion stimulée. Les uns et les autres concluent que le foyer peut se prolonger d'une zone allongée de petit diamètre et possédant un maximum central intense si l'on tient compte de la saturation d'indice. La zone intense présente beaucoup des caractères des filaments. Cependant, l'analyse paraxiale d' **Akhmanov** [65] laisse prévoir que le diamètre oscille, tandis que les calculs de **Marburger** [62] révèlent une structure radiale annulaire due aux aberrations ; aucune de ces prédictions n'est vérifiée expérimentalement, mais il est fort possible que les pertes (diffusion stimulée, relaxation d'orientation) favorisent un mode Gaussien central de diamètre constant, en tous points identique aux filaments.

Ces études, faites pour une situation de régime permanent, restent cependant valides si les foyers sont animés d'une vitesse sensiblement inférieure à celle de la lumière. Si les foyers se déplacent à une vitesse voisine de celle de la lumière, on peut songer à un mécanisme différent. Ainsi **Loy et Shen** [70] supposent qu'une partie du faisceau qui se focalise assiste l'autre partie (qui, elle, se propage rectilignement le long de l'axe) en créant un foyer mobile où il existe un gradient d'indice radial δn ; ce gradient d'indice est suffisant pour former un canal par où passe le filament, ce dernier ne pouvant se propager que tant que le foyer mobile est là pour l'accompagner, c'est-à-dire tant que sa vitesse est sensiblement égale à celle de la lumière. Expérimentalement, on peut constater dans certains cas qu'il existe une concentration de lumière au voisinage des filaments ; il ne faut cependant pas en déduire pour autant qu'elle est indispensable au maintien de ces filaments sur de longues distances, ainsi que l'indiquent les résultats de l'expérience avec les grilles (paragraphe B.2), et les spectres de la figure 12b : ces derniers montrent en effet l'absence totale de lumière non trappée autour des

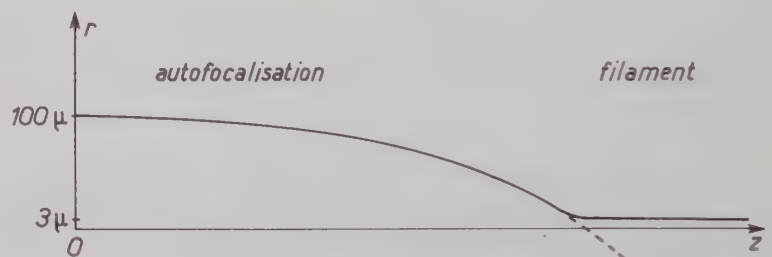


Fig. 23 - Trajectoire vraisemblable des rayons lumineux depuis l'entrée dans la cuve jusqu'à la propagation en filament.

filaments, alors que selon le modèle de **Loy et Shen**, une surintensité notable devrait systématiquement se trouver dans chaque spectre au voisinage de $\lambda = 6943 \text{ \AA}$.

Lorsqu'on excite par des impulsions picoseconde intenses, une caractéristique nouvelle importante modifie le schéma général : la brièveté des impulsions exclut toute limitation par effet Brillouin stimulé de la puissance transmise. Ces impulsions étant d'autre part plus intenses, ce que confirment les faibles distances d'autofocalisation, les champs électriques seront à même d'exciter la contribution électronique à la non-linéarité. Le filament issu de la zone focale devrait donc être de diamètre plus petit pour les raisons que nous venons de voir dans le paragraphe précédent, mais aussi plus instable car les pertes par effet Raman stimulé y sont substantiellement accrues.



IV - DISTORSIONS D'UNE IMPULSION BRÈVE DANS LES MATÉRIAUX ÉLECTROOPTIQUES

L'effet Kerr, ainsi qu'il vient d'être exposé, est capable de déformer de façon considérable les impulsions brèves qui se propagent dans les filaments autoguidés. On peut attendre des résultats similaires dans les cristaux électrooptiques. En effet, le mécanisme de rectification optique crée un champ électrique qui va réagir sur l'impulsion optique par effet Pockels ; le terme non-linéaire représentant cette réaction étant réel en général, c'est principalement un changement d'indice (et non un gain ou une absorption comme dans le cas le plus général de conversion paramétrique) que verra l'impulsion laser. On s'attend donc à ce qu'il se produise des effets très semblables à la modulation de phase et le «self-steepening» dans les filaments. Cependant, un certain nombre de différences importantes valent d'être notées. Nous verrons que :

- le changement d'indice peut être positif ou négatif, impliquant la présence d'auto-focalisation ou d'autodéfocalisation,
- le spectre d'automodulation de phase peut présenter des caractéristiques nouvelles,
- l'amplitude est également déformée.

Le traitement complet du problème implique la résolution simultanée des équations couplées (II.14) et (II.22). Si les termes source sont petits, une solution approchée peut néanmoins être obtenue, en calculant d'abord le champ statique $\underline{E}_s$ dans l'hypothèse où le champ optique $\underline{E}_{opt}$ n'est pas affecté par la non-linéarité, puis en portant dans l'équation (II.14) la perturbation due à $\underline{E}_s$. Ceci nous permettra de prédire les propriétés les plus remarquables des interactions ; deux cas particuliers seront considérés, suivant que les vitesses des ondes optiques et rectifiées sont égales (situation dite d'adaptation de phase) ou sensiblement différentes.

Nous examinerons le cas où le faisceau incident d'ondes planes, de diamètre $\mathcal{D}$ (les ondes peuvent être supposées planes si $\mathcal{D}$ est grand devant la longueur d'onde), tombe normalement sur le cristal d'épaisseur $\mathcal{L}$.

PROBLÈMES POSÉS PAR LA BIRÉFRINGENCE

Toute onde électromagnétique qui pénètre dans un milieu anisotrope est en général réfractée en deux ondes distinctes. Au cours de cette réfraction, les composantes tangentielles des champs électrique $\underline{E}$ et magnétique $\underline{H}$ se conservent, ainsi que les composantes tangentielles des vecteurs d'onde. Dans la situation d'incidence normale que nous avons choisie, les vecteurs d'onde sont donc tous perpendiculaires aux faces du cristal (fig. 24). Soit $\underline{O}_z$ leur direction commune. Pour la clarté de l'exposé, nous supposerons en outre dans ce qui suit que l'onde incidente est polarisée suivant l'un des axes principaux de l'ellipse des indices ; dans ce cas, cette onde se réfracte en un seul faisceau, de vecteur d'onde $\underline{k}$. Expérimentalement, cette situation est d'ailleurs généralement la plus avantageuse dans des cristaux comme le KDP ou le quartz ; dans des cristaux cubiques comme GaAs, il n'y aura qu'une seule onde réfractée en raison de l'isotropie.

Les ondes rectifiées créées par l'interaction non-linéaire peuvent elles aussi se décomposer en deux portions, de vitesses différentes. Suivant **Bloemberger** [11] (chapitre IV.1), nous désignerons par $\hat{e}_1$ et $\hat{e}_2$ les vecteurs

unitaires dans la direction de polarisation de ces deux ondes, et $\underline{k}_1$ et $\underline{k}_2$ leurs vecteurs d'onde.

En toute rigueur, on ne peut parler de vecteur d'onde pour le champ rectifié quasi statique créé par l'impulsion unique, puisqu'il n'y a pas de fréquence porteuse pour ce champ rectifié. Dans les considérations qui suivent sur l'anisotropie, nous supposerons donc, sans que cela nuise à la généralité du raisonnement, que nous avons affaire à la rectification d'une onde modulée sinusoïdalement en amplitude. La notion de vecteur d'onde conserve alors un sens, et le langage s'en trouvera facilité. Le tenseur diélectrique statique sera dénoté $\underline{\epsilon}_s$; nous le supposerons constant dans le domaine spectral qui nous intéresse (0 à 30 cm^{-1}), ainsi qu'il a été discuté au chapitre II. Pour chaque onde, il existe un angle de biréfringence α_i entre les directions des vecteurs déplacement :

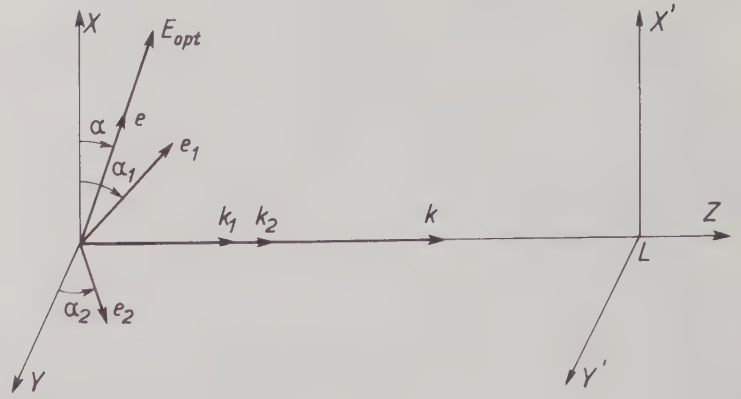


Fig. 24 - Système d'axes relatifs au cristal électrooptique et vecteurs associés aux ondes optiques et rectifiées.

$$\hat{d}_i = \frac{\epsilon_s \hat{e}_i}{|\epsilon_s \hat{e}_i|}$$

et champ électrique tel que $\cos \alpha_i = \hat{d}_i \cdot \hat{e}_i$ ($i = 1, 2$). Cet angle α_i est aussi l'angle entre le vecteur d'onde et le vecteur de Poynting. Dans le domaine visible, α est petit, et la translation transversale que représente le terme en $v_g t_g \alpha (\partial/\partial x)$ dans l'équation (II.22) est insignifiante. Mais en microondes, le cristal peut présenter une biréfringence importante et les α_i sont plus grands. D'une façon plus générale, les conditions $L \sin \alpha_i < D$ devront être respectées si l'on veut assurer le recouvrement des faisceaux optiques et rectifiés pendant la traversée du cristal ; dans la situation d'adaptation des vitesses, cette condition devra tout particulièrement être remplie. Deplus, nous considérerons toujours des faisceaux de diamètre grand devant l'épaisseur optique

$$\frac{c}{\sqrt{\epsilon_0}} t_p$$

des impulsions, de façon que la diffraction du champ rectifié, dont l'angle sera de l'ordre de

$$\frac{c t_p}{\sqrt{\epsilon_0} D},$$

soit maintenue dans des limites comparables à la « marche en crabe » causée par la biréfringence.

L'angle de biréfringence α est un des aspects des problèmes posés par l'anisotropie. Une autre difficulté importante résulte de la différence des vitesses des deux ondes rectifiées. Dans quelques cas particuliers, ce problème ne se pose pas : ainsi dans les cristaux cubiques tels que GaAs. Dans un certain nombre d'autres cas, la difficulté peut se résoudre si l'on oriente convenablement le cristal : par exemple dans le KDP, l'ADP ou le quartz, il se trouve précisément que l'on a avantage, pour maximiser l'interaction, à polariser l'onde optique soit dans le plan défini par le vecteur d'onde et l'axe optique, soit perpendiculairement à ce plan. Or les seuls coefficients électrooptiques non nuls sont χ_{41} et χ_{63} dans la notation de Voigt, ce qui entraîne que tout champ rectifié est polarisé soit perpendiculairement à l'axe c , soit suivant l'axe c . Mais ce sont là des directions principales pour l'ellipsoïde des indices, ce qui implique qu'il n'y a qu'une seule onde rectifiée (et non deux comme dans le cas général), et que l'angle α est nul. Nous admettrons enfin que le cristal peut également être considéré comme isotrope pour les ondes rectifiées si la condition $(|k_1| - |k_2|)L < 2\pi$ est satisfaite. Cette dernière exprime que les deux ondes ordinaire et extraordinaire se déphasent peu à la traversée du cristal. Ceci sera d'autant plus facile à réaliser que le cristal sera court devant la période de l'onde rectifiée. Pour revenir au langage de l'impulsion brève unique, ceci peut se réécrire

$$\frac{L}{c t_p} (\sqrt{\epsilon_1} - \sqrt{\epsilon_2}) < 1$$

où t_p est la durée de l'impulsion et $\sqrt{\epsilon_1}$ et $\sqrt{\epsilon_2}$ sont les indices principaux.

Dans l'hypothèse où toutes ces conditions sont remplies, on peut abandonner la notation vectorielle dans l'équation (II.22).

La biréfringence optique étant faible, et le diamètre D étant grand, on pourra aussi négliger les dérivées

$$v_g \ell_g \propto \frac{\partial}{\partial x}$$

figurant au premier membre des équations (II.14).

Enfin, nous définirons un coefficient de couplage non-linéaire unique $\chi^{(2)}$ donné par :

$$(IV.1) \quad \chi^{(2)} = \hat{e}_s \underline{\chi}^{(2)}(\omega, -\omega) \hat{e}_o \hat{e}_o = \hat{e}_o \underline{\chi}^{(2)}(\omega, 0) \hat{e}_o \hat{e}_s,$$

si $\hat{e}_o$ et $\hat{e}_s$ sont les vecteurs unitaires dans les directions de polarisation du champ optique et statique respectivement, cette relation résultant des propriétés de symétrie intrinsèque du tenseur $\underline{\chi}^{(2)}$ [38].

Le matériau pouvant être supposé non dispersif pour les ondes rectifiées dans la majorité des cas, ainsi qu'il a été discuté au chapitre II, la vitesse de groupe statique v_s est prise égale à la vitesse de phase

$$\frac{c}{\sqrt{\epsilon_s}}$$

où ϵ_s est la constante diélectrique dans la direction de polarisation du champ rectifié. D'autre part, suivant que v_s est égale ou non v_g , on a deux situations bien distinctes. Nous examinerons en premier le cas général $v_s \neq v_g$.

IV.1. Cas $v_s \neq v_g$

L'équation (II.22), ramenée aux coordonnées z et t en vertu de nos hypothèses simplificatrices, devient :

$$(IV.2) \quad \left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} - v_s^2 \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) E_s(z, t) = - \frac{4\pi}{\epsilon_s} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z, t).$$

P , moment dipolaire par unité de volume, est donné par :

$$P(z, t) = \frac{1}{2} \chi^{(2)} E(z, t) E^*(z, t).$$

Nous supposons que le cristal baigne dans un milieu isotrope non dispersif de constante diélectrique statique ϵ'_s , où la vitesse de propagation du champ quasi-statique est :

$$v'_s = \frac{c}{\sqrt{\epsilon'_s}}$$

IV.1.1. Champ rectifié

L'impulsion optique, qui se propage de gauche à droite dans le sens des z croissants (fig. 25), sera supposée telle qu'à l'instant initial $t = 0$ elle n'ait pas encore pénétré dans le cristal. Le cristal étant alors au repos, (aucune onde électromagnétique présente), les conditions initiales sur E_s sont les suivantes :

$$E_s(z, t) \Big|_{t=0} = 0$$

(IV.3) et

$$\frac{\partial}{\partial t} E_s(z, t) \Big|_{t=0} = 0$$

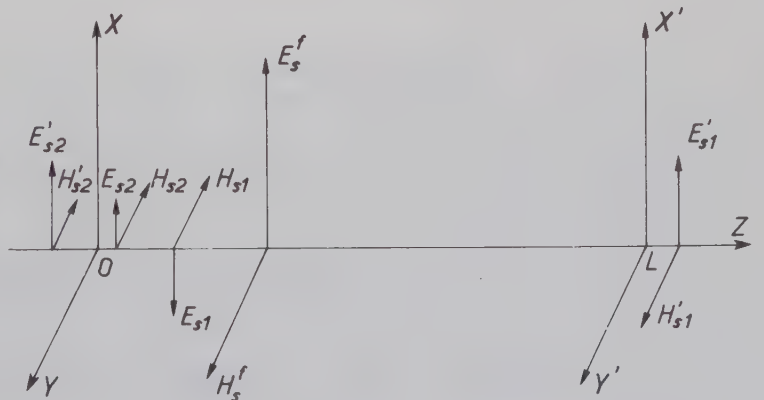


Fig. 25 - Champs électriques et magnétiques se réfléchissant sur les faces du cristal,

Dans les exemples numériques, nous choisirons une impulsion optique Gaussienne; afin d'éviter les problèmes posés par les pieds de l'impulsion, qui théoriquement s'étalent à l'infini, on admettra que le champ électrique $\mathcal{E}$ est nul et de dérivée nulle lorsqu'il devient inférieur à $10^{-3} \mathcal{E}_0$, $\mathcal{E}_0$ étant sa valeur au centre de l'impulsion.

Si l'interaction est faible, l'amplitude ~~$\mathcal{E}$~~ du champ électrique sera très peu affectée par la conversion d'énergie en microondes et la réaction de ce champ rectifié. L'onde de polarisation $\mathcal{P}(z, t)$ se propagera donc sans distorsion. Dans les variables caractéristiques ξ , η de l'équation d'onde du champ optique définies par les relations (III.4), $\mathcal{P}$ est une fonction de η seul. Une solution particulière évidente de l'équation (IV.2) est, posant

$$\epsilon'_0 = \left(\frac{c}{v_g} \right)^2 :$$

$$(IV.4) \quad E_s^f = - \frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon'_0} P(\eta)$$

La solution complète se compose de cette solution forcée et d'une combinaison linéaire particulière des solutions de l'équation (IV.2) sans second membre.

Les solutions homogènes représentent toutes les ondes planes qui se propagent librement le long de O_z à travers le cristal et le milieu voisin. La combinaison linéaire solution du problème physique est déterminée par la condition de continuité des champs électriques et magnétiques à travers les deux faces du cristal en $z = 0$ et $z = L$.

Soient $\eta_s = t - z/v_s$, $\xi_s = t + z/v_s$, $\eta'_s = t - z/v'_s$ et $\xi'_s = t + z/v'_s$ les variables caractéristiques dans le cristal et hors du cristal respectivement. Les solutions homogènes ont a priori pour expression :

$$(IV.5a) \quad E_s^h = E_{s1}(\eta_s) + E_{s2}(\xi_s) \quad (0 < z < L)$$

dans le cristal même, et

$$(IV.5b) \quad E_s^h = E_{s2}'(\xi'_s) \quad (z < 0)$$

$$(IV.5c) \quad E_s^h = E_{s1}'(\eta'_s) \quad (z > L)$$

à l'extérieur, étant entendu que le cristal émet vers l'extérieur les ondes basse fréquence, mais qu'il ne reçoit pour tout rayonnement que l'impulsion optique; les indices 1 et 2 se rapportent aux ondes se propageant vers la droite et vers la gauche respectivement, les grandeurs primées étant relatives au milieu extérieur. Nous n'écrirons pas les champs magnétiques associés, qui sont de la même forme. Mais ces champs magnétiques sont liés de façon simple aux champs électriques. Ainsi $H_{s1}(\eta_s)$ obéit à l'équation (I.1a), d'où :

$$\frac{\partial E_{s1}}{\partial \eta_s} \frac{\partial \eta_s}{\partial z} = - \frac{1}{c} \frac{\partial H_{s1}}{\partial \eta_s} \frac{\partial \eta_s}{\partial t}$$

Tenant compte de l'expression de η_s , on aboutit à :

$$\frac{\partial E_{s1}}{\partial \eta_s} = \frac{v_s}{c} \frac{\partial H_{s1}}{\partial \eta_s}$$

dont l'intégration donne

$$H_{s1} = \sqrt{\epsilon_s} E_{s1} + f'(\xi_s),$$

la constante d'intégration $f(\xi_s)$ étant nulle (condition de rayonnement). On a des relations identiques pour les autres champs magnétiques. Les conditions de continuité pour E_s s'écrivent, en $z=0$:

$$(IV.6) \quad \left[E_s^f(\eta_0) + E_{s1}(\eta_s) + E_{s2}(\xi_s) - E_{s2}'(\xi_s') \right]_{z=0} = 0,$$

et en $z=L$:

$$(IV.7) \quad \left[E_s^f(\eta_0) + E_{s1}(\eta_s) + E_{s2}(\xi_s) - E_{s2}'(\eta_s') \right]_{z=L} = 0,$$

ainsi que les conditions similaires pour H_s en $z=0$

$$(IV.8) \quad \left[\sqrt{\epsilon_0'} E_s^f(\eta_0) + \sqrt{\epsilon_s} E_{s1}(\eta_s) - \sqrt{\epsilon_s} E_{s2}(\xi_s) + \sqrt{\epsilon_s'} E_{s2}'(\xi_s') \right]_{z=0} = 0,$$

et en $z=L$:

$$(IV.9) \quad \left[\sqrt{\epsilon_0'} E_s^f(\eta_0) + \sqrt{\epsilon_s} E_{s1}(\eta_s) - \sqrt{\epsilon_s} E_{s2}(\xi_s) - \sqrt{\epsilon_s'} E_{s1}'(\eta_s') \right]_{z=L} = 0.$$

De ces quatre relations, on retire les coefficients des différents termes composant le champ total. Ceci conduit à la solution suivante, qui satisfait les conditions initiales :

$$(IV.10a) \quad \begin{aligned} E_s(z, t) = \frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon_0'} \bigg\{ & -P(t - z/v_g) + T_1' \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t - \frac{z}{v_s} - 2n \frac{L}{v_s}\right) \\ & - R_2' R_2 \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t - \frac{z}{v_s} - \frac{L}{v_g} - (2n+1) \frac{L}{v_s}\right) \\ & + T_1' R_2 \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t + \frac{z-L}{v_s} - (2n+1) \frac{L}{v_s}\right) \\ & - R_2' \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t + \frac{z-L}{v_s} - \frac{L}{v_g} - 2n \frac{L}{v_s}\right) \bigg\}, \end{aligned}$$

valable dans le cristal ($0 < z < L$),

$$(IV.10b) \quad \begin{aligned} E_s(z, t) = \frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon_0'} \bigg\{ & R_1' P\left(t + \frac{z}{v_s'}\right) \\ & + T_1' R_2 T_2 \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t + \frac{z}{v_s'} - (2n+2) \frac{L}{v_s}\right) \\ & - R_2' T_2 \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t + \frac{z}{v_s'} - \frac{L}{v_g} - (2n+1) \frac{L}{v_s}\right) \bigg\} \end{aligned}$$

valable pour $z < 0$, et

$$(IV.10c) \quad E_s(z, t) = \frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon'_0} \left\{ -T'_2 P\left(t - \frac{z-L}{v'_s} - \frac{L}{v_g}\right) + T'_1 T_2 \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t - \frac{z-L}{v'_s} - (2n+1)\frac{L}{v_s}\right) - R'_2 R_2 T_2 \sum_{n=0}^{\infty} R_2^{2n} P\left(t - \frac{z-L}{v'_s} - \frac{L}{v_g} - (2n+2)\frac{L}{v_s}\right) \right\}$$

valable pour $z > L$.

Nous avons fait ici usage des coefficients de réflexion et de transmission d'ondes planes libres sur les deux faces du cristal :

$$R_1 = \frac{\sqrt{\epsilon'_s} - \sqrt{\epsilon_s}}{\sqrt{\epsilon_s} + \sqrt{\epsilon'_s}}, \quad R_2 = -R_1, \quad T_1 = \frac{2\sqrt{\epsilon'_s}}{\sqrt{\epsilon_s} + \sqrt{\epsilon'_s}}, \quad T_2 = \frac{2\sqrt{\epsilon_s}}{\sqrt{\epsilon_s} + \sqrt{\epsilon'_s}},$$

les indices 1 et 2 correspondant respectivement à la pénétration dans le cristal et à la sortie du cristal.

Les coefficients relatifs à la solution forcée sont les suivants :

$$R'_1 = \frac{\sqrt{\epsilon'_0} - \sqrt{\epsilon_s}}{\sqrt{\epsilon_s} + \sqrt{\epsilon'_s}}, \quad R'_2 = \frac{\sqrt{\epsilon'_0} - \sqrt{\epsilon'_s}}{\sqrt{\epsilon_s} + \sqrt{\epsilon'_s}}, \quad T'_1 = \frac{\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s}}{\sqrt{\epsilon_s} + \sqrt{\epsilon'_s}}, \quad T'_2 = \frac{\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon_s}}{\sqrt{\epsilon_s} + \sqrt{\epsilon'_s}}.$$

Si le cristal est long devant l'impulsion ($L\sqrt{\epsilon'_0} \gg ct_p$), toutes les impulsions rectifiées se séparent nettement les unes des autres. On distingue alors, outre la solution forcée qui se déplace à la vitesse v_g , quatre ondes prenant naissance sur les faces du cristal à l'instant où passe l'impulsion optique. Deux ondes émanent de la première et partent, l'une

$$\frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon'_0} T'_2 P\left(t - \frac{z}{v_s}\right)$$

vers l'intérieur du cristal, l'autre

$$\frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon'_0} R'_1 P\left(t + \frac{z}{v'_s}\right)$$

vers l'arrière en direction du milieu linéaire. Deux ondes semblables

$$- \frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon'_0} R'_2 P\left(t + \frac{z-L}{v'_s} - \frac{L}{v_g}\right) \quad \text{et} \quad - \frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon'_0} T'_2 P\left(t - \frac{z-L}{v'_s} - \frac{L}{v_g}\right)$$

sont créées quand l'impulsion optique franchit la face de sortie. Par la suite, les ondes émises vers l'intérieur du cristal vont et viennent entre les faces du cristal, les coefficients de réflexion et transmission sur chaque face étant R_2, T_2 .

La solution générale (IV.10c) est illustrée sur la figure 26, où sont représentées les variations au cours du temps du champ électrique à la face de sortie. Ces résultats ont obtenus numériquement (voir appendice B.2) pour une impulsion de durée $t_p = 20$ ps et de $1/4$ MW/cm² dans un cristal de $\epsilon_0 = 5$, $\epsilon_s = 25$, traité antireflets pour le champ rectifié ($\epsilon'_s = \epsilon_s$), et supposé non dispersif dans le domaine visible ($v_g = v_0 = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_0}}$).

Le coefficient électrooptique

$$r = \frac{4\pi}{\epsilon_0^2} \chi^{(2)}$$

est choisi égal à 10^{-4} ues. La séparation

$$\frac{L}{v_g} \left(\frac{v_g}{v_s} - 1 \right)$$

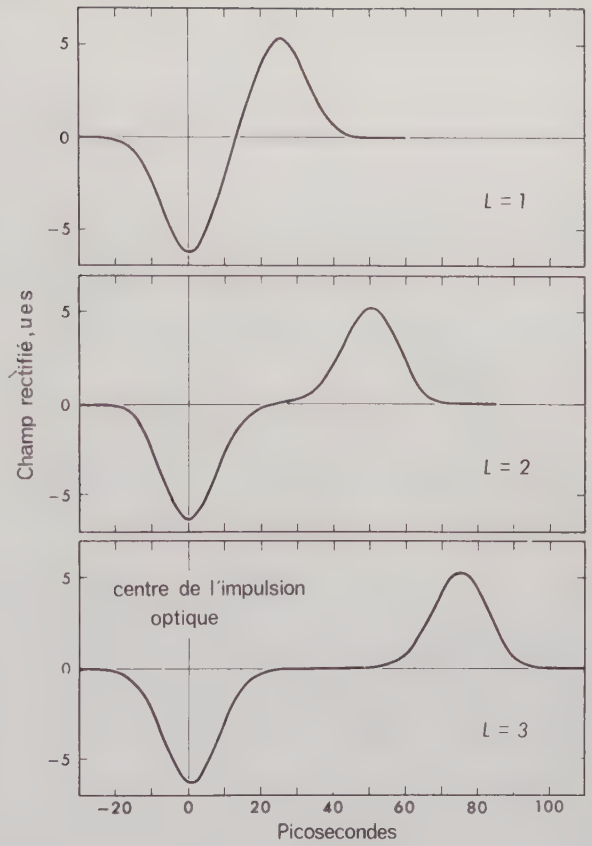
des solutions homogènes issues des faces d'entrée et de sortie est proportionnelle à l'épaisseur du cristal. Les trois courbes correspondent aux cas

$L/v_g t_p = 1, 2, 3$. Vers l'arrière, on constate que les

deux impulsions de même amplitude mais de polarités inverses, sont espacées dans le temps de

$$t = L \left(\frac{1}{v_g} + \frac{1}{v_s} \right).$$

Fig. 26 - Impulsions électriques rectifiées émergeant d'un cristal électrooptique ayant pour constantes diélectriques $\epsilon_0 \approx 5$ et $\epsilon_s = 25$, et de coefficient électrooptique $r = 10^{-4}$ ues. L'impulsion laser excitatrice de $0,25 \text{ MW/cm}^2$ a une durée de 20 ps. Trois cas sont représentés : $\frac{L}{v_g t_p} = 1, 2, 3$.



IV.1.2. Perturbations apportées à l'impulsion laser

Ayant calculé le champ rectifié, nous sommes maintenant en mesure de calculer son influence sur l'impulsion qui l'a créé. Les équations (II.14) deviennent :

$$(IV.11a) \quad \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \varphi(z, t) = \frac{1}{(1+\beta) \left[1 + \frac{(1+\beta) \delta E(z, t)}{4 \epsilon_0} \right]} \left[\omega_0 - \frac{\partial}{\partial t} \varphi(z, t) \right] \frac{\delta E(z, t)}{2 \epsilon_0}$$

$$(IV.11b) \quad \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \mathcal{E}(z, t) = \frac{1}{(1+\beta) \left[1 + \frac{(1+\beta) \delta E(z, t)}{4 \epsilon_0} \right]} \left\{ -\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{\delta E(z, t)}{\epsilon_0} \mathcal{E}(z, t) \right] - \frac{1+\beta}{4} \mathcal{E}(z, t) \left(\frac{\partial}{\partial t} + v_g \frac{\partial}{\partial z} \right) \frac{\delta E(z, t)}{\epsilon_0} \right\}$$

Les résultats obtenus dans le Chapitre III pour l'effet Kerr sans relaxation peuvent se transposer ici. Si le cristal est assez long, la solution forcée exerce seule une influence car les solutions homogènes n'interagissent qu'un court instant en début et en fin de parcours. Nous verrons qu'il y a cependant une différence importante, le changement d'indice vu par l'impulsion optique étant négatif dans la majorité des cas. En effet, la relation (II.7), qui se simplifie du fait de nos hypothèses sur l'isotropie : $\delta E = 8\pi \chi^{(2)} E_s(z, t)$, montre que δE est du signe de $E_s(z, t)$. Or, la solution forcée E_s' est précisément négative si $\epsilon_s > \epsilon_0$.

Phase

La courbe de phase sera donc semblable à celle de la figure 2, mais négative. C'est maintenant la moitié avant de l'impulsion laser qui contribue à l'antistokes, et la moitié arrière au Stokes.

Une intégration de (IV.11a) en tous points semblable à celle qui conduit à la formule (III.5) donne pour la phase de l'impulsion laser en $z = L$:

$$(IV.12) \quad \varphi(L, t) = -\frac{16\pi^2 \chi^{(2)}}{\sqrt{\epsilon_0} (\epsilon_s - \epsilon'_0)} \omega_0 \frac{L}{c} P\left(t - \frac{L}{v_g}\right) + \Delta\varphi(L, t)$$

où $\Delta\varphi$ est la petite contribution des solutions homogènes à l'intérieur du cristal. Si l'on néglige cette contribution, une impulsion symétrique possède un spectre symétrique et identique à celui obtenu pour l'effet Kerr avec $\mathcal{G} = 0$ puisque la polarisation $\mathcal{P}$, ainsi que φ par voie de conséquence, sont proportionnelles à $\mathcal{A}^2(z, t)$.

La figure 27 montre un tel spectre à $\lambda = 6943 \text{ \AA}$ pour les mêmes conditions qu'en figure 26, mais $L = 4v_0 t_p$ et $r = 2 \cdot 10^{-6}$ ues. La dissymétrie imputable aux solutions homogènes apparaît clairement sur la figure 28 :

$$L = 2v_0 t_p \text{ et } r = 10^{-5} \text{ ues.}$$

La plus grosse perturbation vient de la solution homogène se propageant vers l'avant. Cette dernière contribue en effet une quantité positive à la courbe de phase sur l'arrière de l'impulsion. L'aile Stokes se trouve alors artificiellement rallongée par rapport à l'antistokes.

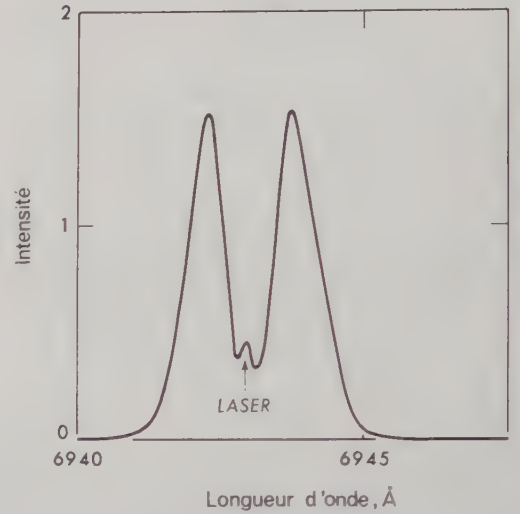


Fig. 27 - Spectre acquis par une impulsion de laser à rubis à la sortie d'un cristal électrooptique, dans les conditions de la figure 26, mais avec $L = 4v_0 t_p$ et $r = 2 \cdot 10^{-6}$ ues.

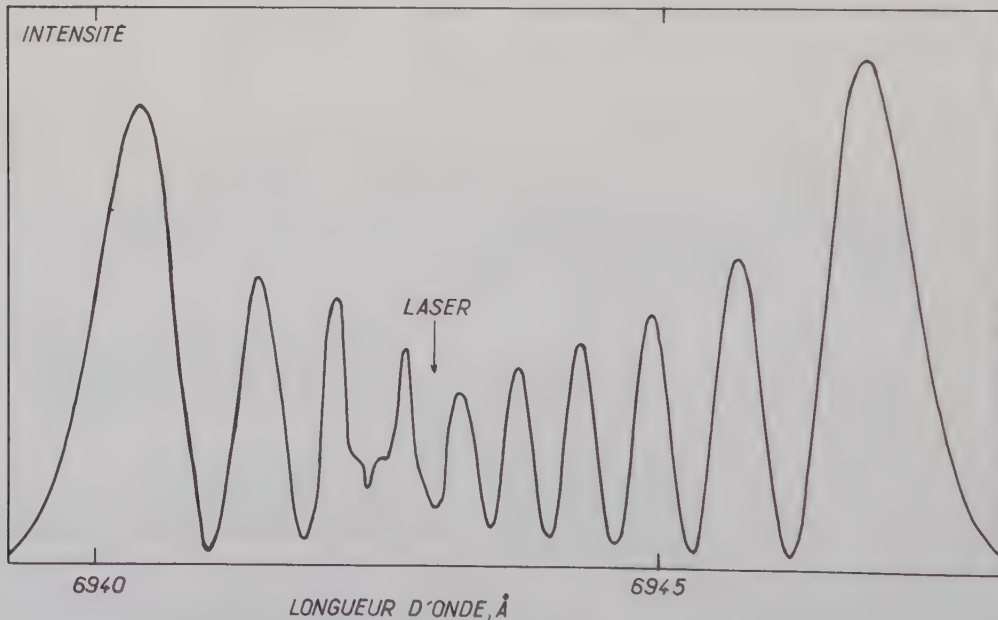


Fig. 28 - Spectre pour les mêmes conditions qu'en figure 27, mais $L = 2v_0 t_p$ et $r = 10^{-5}$ ues.

Enveloppe

Tous les résultats obtenus par De Martini et coll [22] sur les distorsions de l'impulsion sont immédiatement transposables. La seule différence vient du signe du changement d'indice. Aussi doit-on observer le « self-steepening ». Mais en raison du signe de $\delta\epsilon$, c'est le front de montée qui se raidit comme dans le cas d'une onde de choc acoustique (fig. 29).

Ici $t_p = 20$ ps, $L = 2 v_o t_p$,
 $r = 10^{-4}$ ues, $\epsilon_o = 5$, $\epsilon_s = 25$;
 c'est sur l'énergie interne associée au
 champ électrique

$$\rho = (\epsilon_o + \delta\epsilon) \frac{v_o^2}{8\pi}$$

que ces distorsions se voient le mieux.
 On peut, comme pour l'effet Kerr, dé-
 finir une distance de choc [22] :
 $z_c = 0,39 c t_p \sqrt{\epsilon_o / \delta\epsilon_m}$; t_p est
 la largeur $1/e$ de la gaussienne ini-
 tiale, $\delta\epsilon_m$ le maximum de fluctuation
 de la constante diélectrique. Pour le
 cristal BaSrNbO₃, on aurait :
 $\delta\epsilon_m = 2 \cdot 10^{-3}$ pour une impulsion de
 5 GW/cm². Choissant alors une du-
 rée $t_p = 2$ ps, on obtient $z_c \approx 12$ cm.
 Il ne semble pas que l'on puisse ac-
 croître sensiblement ces intensités
 sans détruire le cristal ; par consé-
 quent les distorsions d'enveloppe de-
 vraient être négligeables dans la majo-
 rité des cas, compte tenu que ces cris-
 taux ont des longueurs de quelques
 millimètres à quelques centimètres.

A ces deux effets auto-induits affectant la phase et l'amplitude qui viennent d'être décrits s'ajoute un troisième que laisse prévoir l'analogie avec l'effet Kerr : la défocalisation du faisceau. Reprenant les valeurs numériques de l'exemple précédent, on voit qu'un cristal de 1 cm de long communiquerait une divergence d'environ 10^{-3} rad, à un faisceau de 5 mm de diamètre ; l'effet serait évidemment plus important pour un diamètre plus petit.

IV,2. Cas $v_s \approx v_g$

Il est remarquable que l'interaction résonante se produise lorsque les vitesses de groupe -et non pas les vitesses de phase comme dans le cas général de la conversion paramétrique- deviennent égales. Ceci vient du fait que les oscillations du champ rectifié doivent se bloquer sur l'enveloppe de l'impulsion optique, dont la vitesse est v_g , et non sur les oscillations du champ optique proprement dit.

Comme précédemment, nous étudierons tour à tour la formation des impulsions rectifiées et la réaction sur l'impulsion optique.

IV,2.1. Champ rectifié

Il existe deux méthodes pour parvenir au résultat : intégrer (IV,2) en faisant $E_s = E_o'$ ou effectuer un passage à la limite dans les expressions (IV,10). C'est cette dernière voie que nous suivrons. Nous supposons, comme précédemment, que les pertes et l'influence du champ rectifié sur ω sont négligeables. ω ne dépend alors que de η . Posons $\Delta\epsilon = \epsilon_s - \epsilon_o'$. Ne retenant que la solution forcée et les deux champs homogènes créés à la face d'entrée, on obtient :

$$E_s(z,t) = \frac{4\pi}{\Delta\epsilon} \left[-P\left(t - \frac{z\sqrt{\epsilon_o'}}{c}\right) + \frac{\sqrt{\epsilon_o'} + \sqrt{\epsilon_s'}}{\sqrt{\epsilon_o' + \Delta\epsilon} + \sqrt{\epsilon_s'}} P\left(t - \frac{z}{c} \sqrt{\epsilon_o' + \Delta\epsilon}\right) - \frac{\Delta\epsilon}{2\sqrt{\epsilon_o'}(\sqrt{\epsilon_o'} + \sqrt{\epsilon_s'})} P\left(t + \frac{z}{v_s}\right) \right].$$

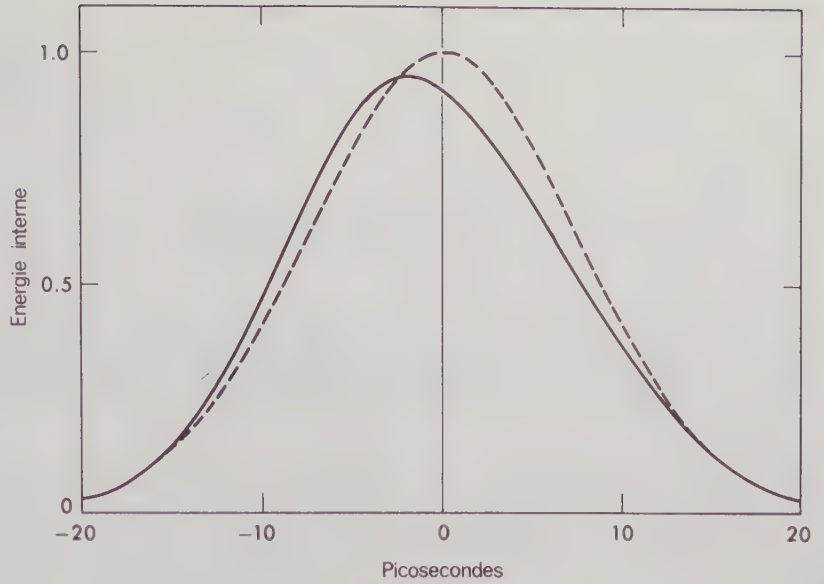


Fig. 29 - Distorsion d'un profil d'énergie $\rho = (\epsilon_o + \delta\epsilon) \frac{\hbar^2}{8\pi}$ normalisé à l'unité pour une impulsion de durée $t_p = 20$ ps, $L = 2 v_o t_p$, $r = 10^{-4}$ ues, $\epsilon_o = 5$, $\epsilon_s = 25$. En pointillé : profil à l'instant initial.

Effectuons un développement limité du deuxième terme :

$$P\left(t - \frac{z}{c} \sqrt{\epsilon'_0 + \Delta\epsilon}\right) = P(\eta + d\eta) = P(\eta) + d\eta \frac{\partial P(\eta)}{\partial \eta}$$

avec

$$d\eta = -\frac{1}{\sqrt{2}} \frac{z}{c} \sqrt{\epsilon'_0} \frac{\Delta\epsilon}{2\epsilon'_0} \quad \text{car} \quad \eta = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(t - \frac{z}{v_g}\right).$$

d'où

$$E_s(z, t) = \frac{4\pi}{\Delta\epsilon} \left\{ P(\eta) \left(\frac{\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s}}{\sqrt{\epsilon'_0 + \Delta\epsilon} + \sqrt{\epsilon'_s}} - 1 \right) - \frac{z}{c} \frac{\Delta\epsilon}{2\sqrt{\epsilon'_0}} \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\partial}{\partial \eta} P(\eta) - \frac{P\left(t + \frac{z}{v_s}\right)}{2\sqrt{\epsilon'_0} (\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} \right\}.$$

Soit

$$(IV.13) \quad E_s(z, t) = -\frac{2\pi}{\sqrt{\epsilon'_0}} \frac{z}{c} \frac{\partial}{\partial t} P\left(t - \frac{z}{v_g}\right) - \frac{2\pi}{\sqrt{\epsilon'_0} (\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} \left[P\left(t - \frac{z}{v_g}\right) + P\left(t + \frac{z}{v_s}\right) \right].$$

La méthode utilisée pour le calcul de E_s fait apparaître le premier terme, qui est la solution forcée, comme la différence entre deux impulsions intenses de même amplitude :

$$\frac{4\pi}{\epsilon_s - \epsilon'_0} \frac{\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s}}{\sqrt{\epsilon'_s} + \sqrt{\epsilon'_s}} P\left(t - \frac{z}{v}\right)$$

possédant des vitesses v légèrement différentes v_g et v_s ; l'une de ces impulsions est la solution homogène, l'autre est une fraction de la solution forcée, la portion restante devenant le deuxième terme de (IV.13). Les deux impulsions principales s'annulent en $z=0$ et se décalent proportionnellement à z , d'où la dépendance en $z \frac{\partial P}{\partial t}$. Tant que ces deux impulsions ne se sont pas séparées de plus de $v_0 t_p$, l'expression (IV.13) est une bonne approximation.

On peut dans ce contexte définir une « longueur de cohérence » ℓ_c telle que :

$$\ell_c = \frac{v_g}{v_g - v_s} v_g t_p.$$

Au delà, pour $z > \ell_c$, c'est la formule (IV.10) qui est appropriée.

Vue sous un autre angle, la situation est celle de l'excitation résonante d'un oscillateur harmonique. Ce résultat est plus transparent encore si l'on prend pour P une onde optique modulée sinusoidalement en amplitude : la solution qui croît linéairement possède alors les propriétés usuelles de proportionnalité à la fréquence et de déphasage de $\pi/2$ relativement à la modulation, comme dans le cas de la création d'harmonique (appendice C). Une différence naît cependant de ce que la modulation possède une fréquence bien définie, tandis que l'impulsion unique a un spectre étalé (voir ci-dessous), qui ne peut se décrire en termes de vitesse de phase, mais seulement de vitesse de groupe.

L'impulsion unique doit donc se disperser si la vitesse de phase n'est pas constante dans son domaine spectral ; ces effets devraient cependant être négligeables, eu égard à la faible longueur des cristaux. Si $\delta\Omega$ est la largeur spectral de l'impulsion rectifiée ($\delta\Omega \approx 1/t_p$), ceci peut s'écrire :

$$\frac{L}{v_s} \left(\delta\Omega \frac{dv_s}{d\omega} \right) < v_s t_p,$$

soit :

$$\frac{dv_s}{d\omega} < \frac{1}{L} (v_s t_p)^2$$

Cette condition est réalisée dans la quasi totalité des cas d'intérêt ($t_p \approx 5$ ps, $L \approx 10$ mm) compte tenu de l'éloignement relatif des bandes ($\Omega_T > 100$ cm⁻¹) [88].

Les champs réfléchis et transmis sur la face de sortie sont :

$$(IV.15) \quad E_r(z, t) = \frac{2\pi}{\sqrt{\epsilon'_0}(\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} \left[(\sqrt{\epsilon'_0} - \sqrt{\epsilon'_s}) \frac{\partial P}{\partial t} \left(t + \frac{z}{v_g} - \frac{2L}{v_g} \right) \frac{L}{c} + \frac{2\sqrt{\epsilon'_s}}{\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s}} P \left(t + \frac{z}{v_g} - \frac{2L}{v_g} \right) \right]$$

valable pour $0 < z < L$, et

$$(IV.16) \quad E_t(z, t) = \frac{2\pi}{\sqrt{\epsilon'_0}(\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} \left[-2\sqrt{\epsilon'_s} \frac{\partial P}{\partial t} \left(t - \frac{z}{v_g} \right) \frac{L}{c} + \frac{\sqrt{\epsilon'_0} - \sqrt{\epsilon'_s}}{\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s}} P \left(t - \frac{z}{v_g} \right) \right]$$

valable pour $z > L$.

Dans le cas particulier $\epsilon'_s = \epsilon'_0$, le premier terme de (IV.15) et le deuxième de (IV.16) disparaissent. A titre d'exemple, la figure 30 est un « instantané » obtenu numériquement et pris 100 ps après qu'une impulsion gaussienne de largeur $1/e t_p = 20$ ps ait franchi la face d'entrée d'un cristal non dispersif ($v_g = v_0$) d'épaisseur optique $L\sqrt{\epsilon'_0} = 12$ mm, avec $\epsilon_0 = 5$ et $r = 2 \cdot 10^{-6}$ ues. L'intensité crête est de 0,25 GW/cm².

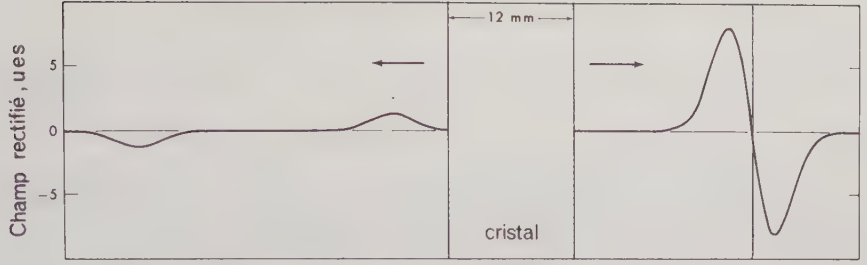


Fig. 30 - « Photographie » des diverses impulsions rectifiées prise 100 ps après qu'une impulsion gaussienne de 20 ps ait pénétré dans un cristal tel que : $\epsilon'_0 = \epsilon'_s = \epsilon'_s = 5$, $L\sqrt{\epsilon'_0} = 12$ mm, $r = 2 \cdot 10^{-6}$ ues, Intensité crête : 0,25 GW/cm².

Spectre

On voit (fig. 31, courbe 1) le spectre correspondant de l'impulsion rectifiée allant vers l'avant. Cette impulsion effectue environ un cycle d'oscillation sur deux fois la durée de l'impulsion optique. Son spectre est donc étalé avec un maximum à $1/2t_p$ et une largeur du même ordre. A titre de comparaison, nous avons représenté le spectre des impulsions allant vers l'avant pour les conditions de la figure 26, c'est-à-dire un cristal ayant $\epsilon_s = 5\epsilon_0$ et tel que $L\sqrt{\epsilon_0}/ct_p = 1$ (courbe 2) et pour

$L\sqrt{\epsilon_0}/ct_p \gg 1$ (courbe 3).

Pour des impulsions laser très brèves telles que des impulsions comprimées [44,45,89], ce spectre pourrait théoriquement venir dans l'infrarouge proche ou lointain où sa détermination serait plus aisée et pourrait fournir une mesure indirecte de la durée des impulsions laser. Ceci ne serait cependant possible qu'à la condition que le cristal ne possède pas de bandes d'absorption dans une bande de fréquences assez large autour de $1/2t_p$.

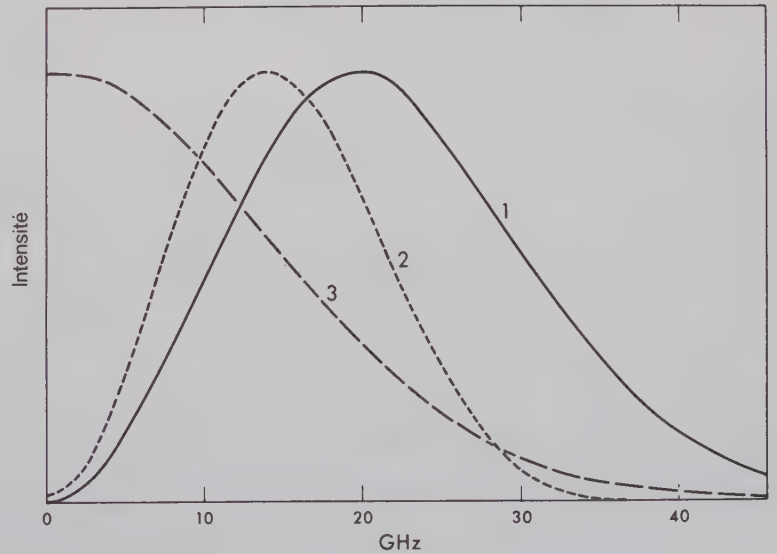


Fig. 31 - Spectre des impulsions rectifiées engendrées vers l'avant par des impulsions de durée t_p de 20 ps :

COURBE 1 - dans les conditions de la figure 30 avec phase matching ;

COURBE 2 - dans les conditions de la figure 26, pour $\epsilon_s = 5\epsilon_0$ et une longueur $L = v_0 t_p$ avec $v_0 = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_0}}$;

COURBE 3 - comme courbe 2, mais $L \gg v_0 t_p$.

Les intensités sont normalisées.

IV.2.2. Perturbations apportées à l'impulsion laser

Comme précédemment, le champ rectifié réagit sur la phase et l'enveloppe de l'impulsion excitatrice.

Phase

Il est nécessaire d'effectuer l'intégration de (IV.11a) car $\delta\epsilon$ dépend linéairement de z . Reprenant les variables ξ, η , on écrit (IV.11a) au premier ordre :

$$(IV.17) \quad \sqrt{2} \frac{\partial}{\partial \xi} \varphi(\xi, \eta) = \frac{\omega_0}{1+\beta} \frac{\delta\epsilon(\xi, \eta)}{2\epsilon_0}.$$

Compte tenu de (II.7) et (IV.13), $\delta\epsilon$ s'écrit en variables ξ, η :

$$\delta\epsilon(\xi, \eta) = -\frac{16\pi^2 \chi^{(2)} (\xi-\eta)}{\epsilon'_0} \frac{\partial}{\partial \eta} P(\eta) - \frac{16\pi^2 \chi^{(2)}}{\sqrt{\epsilon'_0}(\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} P(\eta)$$

(IV.17) devient donc :

$$\sqrt{2} \frac{\partial}{\partial \xi} \varphi(\xi, \eta) = -\frac{4\pi^2 \chi^{(2)} \omega_0}{\epsilon_0 \epsilon'_0} (\xi-\eta) \frac{\partial}{\partial \eta} P(\eta) - \frac{8\pi^2 \chi^{(2)} \omega_0}{\sqrt{\epsilon'_0}(\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} \frac{1}{\epsilon_0} P(\eta)$$

qui s'intègre, compte tenu de la condition initiale $\varphi(z=0)=0$:

$$\sqrt{2} \varphi = -\frac{4\pi^2 \chi^{(2)} \omega_0}{\epsilon_0} \left[\frac{(\xi-\eta)^2}{2\epsilon'_0} \frac{\partial}{\partial \eta} P(\eta) + \frac{2(\xi-\eta) P(\eta)}{\sqrt{\epsilon'_0}(\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} \right]_{z=0}^{z=L}.$$

Soit :

$$(IV.18) \quad \varphi(L, t) = -\frac{4\pi^2 \chi^{(2)} \omega_0}{\epsilon_0 c^2} L^2 \frac{\partial}{\partial t} P\left(t - \frac{z}{v_g}\right) - \frac{8\pi^2 \chi^{(2)} \omega_0}{\epsilon_0} \frac{L}{c} \frac{P\left(t - \frac{z}{v_g}\right)}{(\sqrt{\epsilon'_0} + \sqrt{\epsilon'_s})} + \Delta\varphi(L, t).$$

Nous avons rajouté un troisième terme :

$$\Delta\varphi(L, t) = \frac{4\pi \chi^{(2)} \omega_0}{\epsilon_0} \int_{\xi=\eta}^{\xi=\eta + \frac{L}{2v_g}} E_r\left(\xi - \frac{\sqrt{2}L}{v_g}\right) d\xi$$

qui représente la contribution du champ «réfléchi» sur la face de sortie. Si $L \gg v_0 t_p$, le premier terme, qui dépend quadratiquement de L , domine. Ceci contraste avec ce qui se passe pour l'effet Kerr où l'on prédit et vérifie expérimentalement une loi de dépendance linéaire (chapitre III).

Les influences des trois termes de (IV.18) apparaissent sur la figure 32a (dans les conditions de la fig. 30). La contribution principale en $\partial P / \partial t$ donne la forme générale de la courbe de phase. Le deuxième terme, qui dépend linéairement de L , est responsable de l'asymétrie, la phase étant légèrement négative au centre de l'impulsion. Enfin, la queue de la courbe est attribuable au troisième terme ; elle retombe à zéro après un temps $2L/v_0$, c'est-à-dire 80 ps derrière le centre de l'impulsion (c'est l'instant où le champ réfléchi sort du cristal par la face d'entrée).

On trouve sur la figure 32b la courbe de fréquence $f = -\frac{1}{2\pi} \frac{\partial \varphi}{\partial t}$ correspondante, et sur la figure 33 le spectre pour les mêmes conditions, mais $L\sqrt{\epsilon_0} = 24$ mm au lieu de 12. La figure 32b permet de comprendre

la structure du spectre. L'aile Stokes tire son énergie du centre de l'impulsion. Pour un shift ΔF donné, il y a deux points E et F dans l'impulsion qui contribuent ; d'où la structure déjà rencontrée dans le cas de l'effet Kerr. En revanche, quatre points dans deux régions distinctes contribuent à chaque fréquence antistokes. Chacune des deux régions donne un spectre analogue au Stokes (interférences entre les points A,B, ou C,D) tandis que la structure fine est due à une interférence croisée entre ces deux régions (entre A et C par exemple). Cette structure fine est le caractère remarquable de ce genre de spectre. Expérimentalement, l'observation de ces spectres serait la preuve du phénomène de self modulation par rectification optique.

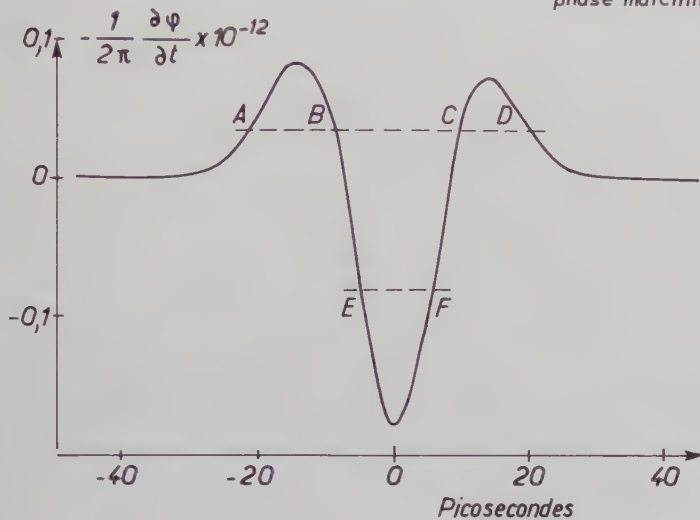


Fig. 32b - Shifts correspondants $-\frac{1}{2\pi} \frac{\partial \varphi}{\partial t}$; l'avant et l'arrière de l'impulsion donnent quatre contributions à l'aile antistokes, contre deux seulement à l'aile Stokes pour le centre.

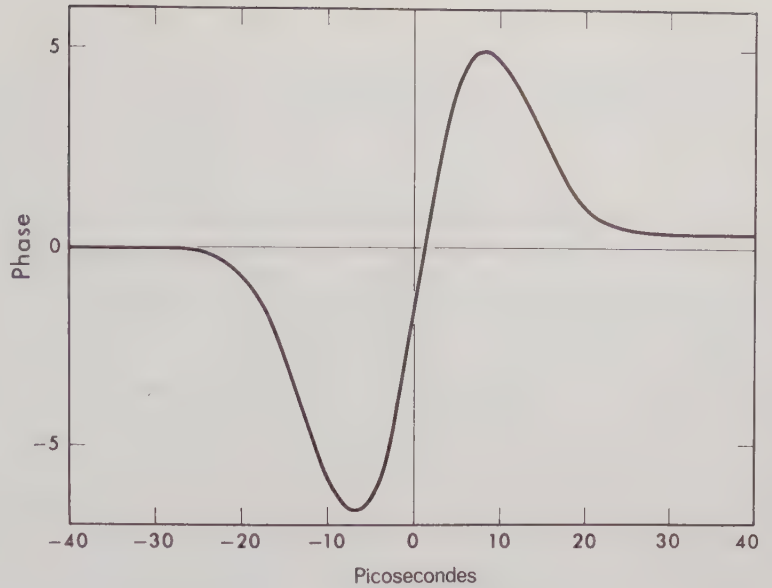


Fig. 32a - Courbe de phase $\varphi(t)$ dans les conditions de la figure 30 : phase matching, $t_p = 20$ ps, $\epsilon_0 = 5$ et $L = 2 v_0 t_p$.

Notons à ce propos que la distorsion électronique est cause de self-trapping et self-modulation [50] dans les solides lorsque l'intensité dépasse 10 GW/cm^2 . Ceci risque de brouiller l'effet cherché. On doit cependant être en mesure de distinguer les effets de self-modulation par rectification et distorsion électronique, ce que permet la présence ou l'absence de structure fine (outre que la modulation par distorsion électronique est confinée en filaments).

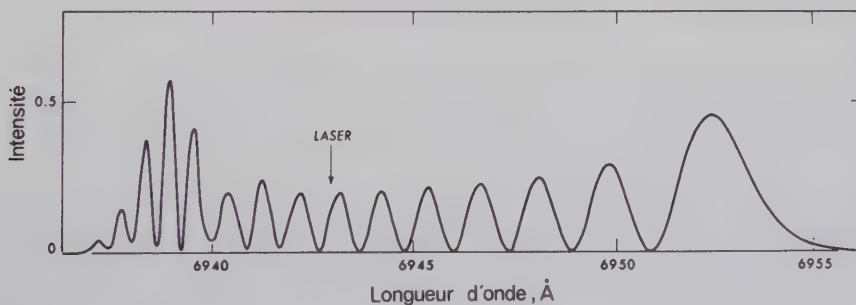


Fig. 33 - Spectre acquis par une impulsion de laser à rubis dans les conditions de propagation de la figure 32, mais avec $L = 4 v_0 t_p$.

Enveloppe

Deux phénomènes sont responsables des déformations de l'enveloppe d'une impulsion : la conversion d'énergie stimulée par le champ rectifié qui est créé, et le changement de vitesse

$$-c \frac{\delta \epsilon}{2 \epsilon_0}.$$

Nous avons calculé (fig. 34) le profil de l'énergie

$$\rho = (\epsilon_0 + \delta \epsilon) (\mathcal{E} \mathcal{E}^* / 8\pi)$$

pour une impulsion, Gaussienne à $t = 0$ (en pointillé), de 20 ps et 0,25 GW/cm² sortant d'un cristal ayant $\epsilon_0 = 5$, $L\sqrt{\epsilon_0} = 6$ mm et $r = 5 \cdot 10^{-5}$ ues.

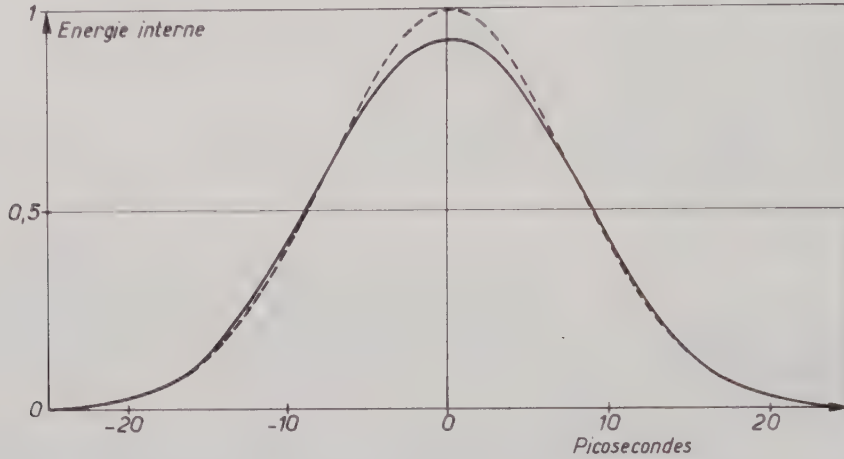


Fig. 34 - Déformation de la courbe d'énergie interne d'une impulsion de 20 ps, normalisée à la valeur maximale à l'instant initial (0,25 GW/cm²) lors de sa propagation dans un cristal électrooptique de susceptibilité $r = 5 \cdot 10^{-5}$ ues et de constante diélectrique $\epsilon_0 = 5$; trajet optique $L\sqrt{\epsilon_0} = 6$ mm ; en pointillé : profil à l'instant initial.

L'influence sur la focalisation du faisceau optique est plus complexe dans le cas général $v_g \neq v_s$. Compte tenu du signe de $\delta \epsilon$, il y a défocalisation à l'avant et focalisation à l'arrière de l'impulsion laser. Si le faisceau a un diamètre petit devant les dimensions du cristal, il en résulte une diminution de l'intensité sur l'axe à l'avant, d'une augmentation à l'arrière ; ceci raccourcit la durée de l'impulsion sur l'axe et déplace son sommet vers l'arrière.

IV,3. Considérations expérimentales

Jusqu'à présent, seule l'existence d'un champ rectifié a pu être vérifiée expérimentalement [2,35,52]. La modulation de phase n'a pas été observée car les impulsions déclenchées étaient trop longues, ou plus exactement, la période de la modulation à redresser était trop longue. Seules, les impulsions de quelques picosecondes émises par des lasers à modes couplés peuvent subir une modulation de phase aisément décelable, l'étalement de celle-ci étant inversement proportionnel à t_p^2 car

$$\delta \omega \simeq \frac{\varphi_{\max}}{t_p} \quad \text{et} \quad \varphi \neq \frac{\partial \mathcal{P}}{\partial t},$$

à condition que l'adaptation de phase soit réalisée. D'autre part, un $\chi^{(2)}$ élevé et une forte intensité sont nécessaires.

C'est ainsi qu'un spectre de même forme que celui de la figure 17 serait obtenu pour une impulsion à 1,06 μ de 4 ps, 5 GW/cm² dans un cristal de GaAs ayant 6 mm de long. Ce dernier possède une susceptibilité de $1,7 \cdot 10^{-6}$ ues [52], sa constante diélectrique optique est $\epsilon_0 = 12$; en outre on a $\epsilon_s \neq \epsilon_0$, ce qui permet l'adaptation des vitesses. Enfin, si le faisceau possède un diamètre d égal à 0,5 cm, la longueur de diffraction

$$\frac{\sqrt{\epsilon_s} d^2}{c t_p}$$

de l'impulsion rectifiée (distance de Fresnel) est de 2 cm ; la diffraction ne joue pas de rôle appréciable.

Un certain nombre d'autres composés cubiques semblent prometteurs pour ce genre d'expériences : CuCl, ZnS, ZnTe possèdent des susceptibilités du même ordre que GaAs, et l'adaptation de phase y est facile à

réaliser. Ces propriétés sont résumées dans le Tableau I, repris d'un article de revue de Rez [90] et de Yariv [91].

Cristal	Indice de réfraction	Constante diélectrique UHF	Coefficient électrooptique ($r \times 10^8$ esu)
CuCl	$n_o = 1,97$	8	$r_{41} = 18,3$
ZnS	$n_o = 2,37$	8,3	$r_{41} = 6,0$
ZnSe	$n_o = 2,66$	8,1	$r_{41} = 6,0$
ZnTe	$n_o = 2,97$	10,1	$r_{41} = 13,7$
GaAs	$n_o = 3,34$	11.5	$r_{41} = 2.5^*$ $r_{41} = 15^{**}$
KDP	$n_o = 1,51$	$\epsilon // c = 20$	$r_{41} = 26,0$
	$n_e = 1,47$	$\epsilon \perp c = 45$	$r_{63} = 32,0$
DKDP	$\simeq 1,5$	$\epsilon // c \simeq 50$	$r_{41} = 26,0$ $r_{63} = 72,0$
ADP	$n_o = 1,52$	$\epsilon // c \simeq 12$	$r_{41} = 84$
	$n_e = 1,48$		$r_{63} = 25$
Quartz	$n_o = 1,54$	$\epsilon // c \simeq 4,3$	$r_{41} = 0,6$
	$n_e = 1,55$	$\epsilon \perp c \simeq 4,3$	$r_{63} = 1,9$
Oxalate d'ammonium			$r_{41} = 680$
			$r_{52} = 980$
			$r_{63} = 750$

* $\lambda = 1 - 10,6 \mu$ [85]

** $\lambda = 10,6 \mu$ [53]

Tableau I - Indices et susceptibilités de quelques cristaux électrooptiques.

L'adaptation ne serait pas possible dans le KDP, l'ADP ou le DKDP. Mais les susceptibilités sont assez fortes et la modulation de phase doit conduire à des étalements spectraux appréciables pour des impulsions ultra courtes avec des échantillons de quelques centimètres de long.

Nous avons effectué une tentative infructueuse de mise en évidence de la modulation de phase à l'aide du laser à modes couplés décrit au chapitre précédent. Le cristal était l'oxalate d'ammonium, qui possède une susceptibilité élevée. L'échec est attribué en partie aux faibles dimensions de notre échantillon, et à son seuil de destruction assez bas.

A part l'intérêt des spectres de modulation de phase pour mesurer les durées d'impulsion, aussi bien avec adaptation de vitesses que sans, le fait que le balayage de fréquence (« chirp ») soit linéaire au centre de l'impulsion permet d'espérer d'utiliser les techniques de compression [44,45,89] avec une meilleure efficacité que dans le cas de la modulation par effet Kerr.

Appendice A

Le «rocking» moléculaire a été proposé par Svelto [52] pour expliquer le self-trapping des impulsions pico-seconde. Le «rocking» désigne les petits mouvements que peut effectuer une molécule dans l'enceinte que constituent ses voisines, dans l'hypothèse où cette enceinte reste stable un temps suffisant pour permettre à la molécule considérée d'effectuer quelques oscillations, et ce indépendamment de son mouvement de diffusion. Si le liquide est au repos, les forces mises en œuvre sont essentiellement dues au potentiel d'interaction entre les molécules voisines. A ces forces viendra s'ajouter un couple si un champ électrique est appliqué. Nous chercherons précisément dans ce dernier cas quelle peut être l'amplitude du mouvement et l'ordre de grandeur de la susceptibilité.

Forces en présence et hypothèses sur le mouvement

Nous considérons les petits mouvements de molécules en forme d'ellipsoïdes de révolution allongés (molécules linéaires comme CS_2 par exemple) sous l'action d'un champ électromagnétique linéairement polarisé. L'axe de révolution $\underline{v}$ d'une molécule est repéré par son angle polaire θ avec la direction Oz de polarisation du champ électrique $\underline{E}$, et son azimut φ (fig. A.1).

Par ailleurs, les molécules voisines constituent une «cage» pour la molécule étudiée. En raison de l'existence d'un potentiel d'interaction moléculaire (de type Lennard-Jones par exemple), cette cage exerce sur la molécule un couple de rappel de grandeur $\mu \Theta$, Θ étant l'angle entre $\underline{v}$ et une certaine direction $\underline{v}_0(\theta_0, \varphi_0)$ qui est l'axe de la cage. Pour Θ petit, on admettra que μ est indépendant de Θ en première approximation. En l'absence de toute force extérieure, et si $\underline{v}_0$ est maintenu fixe, le mouvement de la molécule dans sa cage est donc harmonique. Si nous nous intéressons à la composante θ , l'équation du mouvement est :

$$I \frac{d^2\theta}{dt^2} = -\mu (\theta - \theta_0)$$

où I est le moment d'inertie principal de la molécule.

Si maintenant le champ électrique $E(t)$ est appliqué, il exerce un couple :

$$(A.1) \quad M(t) = M_0(t) \sin \theta \cos \theta$$

avec $M_0(t) = -K^2 \Delta \alpha E^2(t)$, où $\Delta \alpha$ est la différence $\alpha_{||} - \alpha_{\perp}$ des composantes principales du tenseur de polarisabilité de la molécule, et

$$K = \frac{(\epsilon + 2)^2}{9}$$

est le facteur de champ local avec ϵ constante diélectrique macroscopique du liquide. Dans le plan $(Oz, \underline{v}_0)$, le mouvement a pour équation :

$$(A.2) \quad I \frac{d^2\theta}{dt^2} = M(t) - \mu (\theta - \theta_0).$$

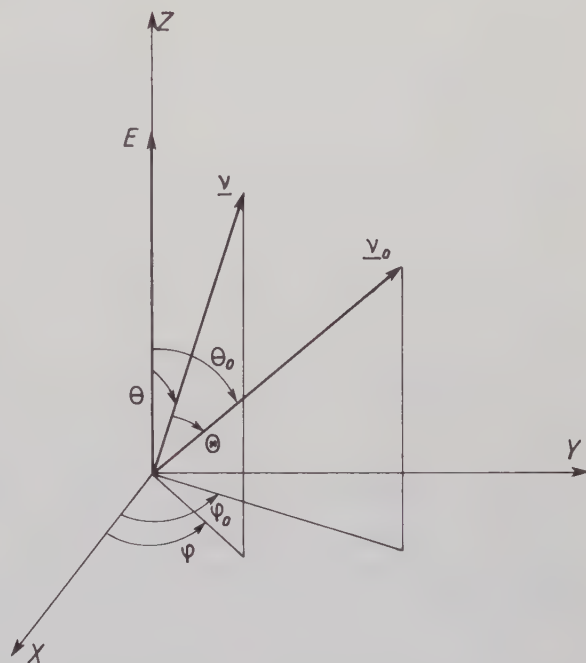


Fig. A.1 - Système d'axes relatif à une molécule anisotrope soumise à un champ électrique polarisé linéairement.

Dans la réalité, la cage entourant la molécule se déforme. θ_0 n'est donc pas constant. Afin de préciser la loi de variation de θ_0 , nous ferons l'hypothèse supplémentaire que la molécule écartée de sa direction d'équilibre $\underline{y}_0$ tend à déplacer ses voisines, donc à entraîner sa cage dans une rotation qui sera décrite par l'équation :

$$(A.3) \quad \xi \frac{d\theta_0}{dt} = \mu (\theta - \theta_0)$$

où ξ est le coefficient de friction moyen, en première approximation indépendant, ainsi que μ , de l'alignement imposé par le champ aux molécules de la cage.

Les équations (A.2) et (A.3) décrivent complètement le mouvement. Il reste cependant à préciser les conditions initiales.

Nous admettons que le mouvement Brownien qui anime les molécules implique une série de chocs discrets qui changent en un temps infiniment court l'orientation de $\underline{y}$ et $\underline{y}_0$ de façon aléatoire et font perdre à la molécule considérée la mémoire de son mouvement précédent ; entre deux chocs, le mouvement est entièrement décrit par les équations (A.1) et (A.2). Cette hypothèse des chocs discrets, qui est valable dans les gaz, est bien sûr discutable pour les liquides, l'interaction entre molécules étant plutôt un processus continu de diffusions élastiques. A cet égard, le traitement correct du problème impliquerait plutôt un calcul numérique du genre de celui de **Rahman** [87] ; mais en raison du nombre de paramètres à manipuler (deux coordonnées angulaires en sus des trois coordonnées de position) sa complexité serait prohibitive dans l'optique de ce travail.

Si les chocs se produisent suivant un processus de Poisson, l'ensemble des molécules qui ont subi un choc entre les instants t_0 et $t_0 + dt$ voit sa population décroître suivant la loi

$$e^{-\frac{t-t_0}{\tau_c}}$$

τ_c étant le temps de vol moyen entre deux chocs.

Considérons la classe de molécules de cet ensemble dont le vecteur $\underline{y}$ est dirigé dans un angle solide élémentaire $d\Omega$. Il est clair qu'immédiatement après un choc, chaque molécule possède une certaine vitesse angulaire $d\theta/dt$ non nulle ; on a de même

$$d\theta_0/dt \neq 0.$$

En revanche, les valeurs moyennes de $d\theta/dt$ et $d\theta_0/dt$ pour cette classe sont nulles. Remarquons que pour une direction θ_0 donnée, le produit $\sin \theta \cos \theta$ figurant dans l'expression (A.1) peut être considéré comme constant si les rotations des molécules sont faibles. Admettant enfin que la constante de rappel μ est la même pour toutes les molécules, nous voyons que chaque molécule obéit en moyenne aux équations couplées :

$$(A.4) \quad I \frac{d^2 v(t)}{dt^2} = M_0(t) \sin v_0(t_0) \cos v_0(t_0) - \mu [v(t) - v_0(t)]$$

$$(A.5) \quad \xi \frac{dv_0}{dt} = \mu [v(t) - v_0(t)]$$

où $v(t)$ et $v_0(t)$ sont les valeurs moyennes (à l'instant t sur la classe considérée) de θ et θ_0 respectivement ; les conditions initiales sont :

$$\left. \frac{dv}{dt} \right|_{t=t_0} = \left. \frac{dv_0}{dt} \right|_{t=t_0} = 0$$

Notons que les quantités $v - v_0$ et dv_0/dt , dont l'intérêt apparaîtra plus tard, sont proportionnelles à $\sin v_0 \cos v_0$ au second ordre près.

$$(A.6) \quad v(t) - v_0(t) = (v - v_0)' \sin v_0 \cos v_0$$

$$(A.7) \quad \frac{d}{dt} v_0(t) = \left(\frac{dv_0}{dt} \right)' \sin v_0 \cos v_0$$

où

$$(v - v_0)' \text{ et } \left(\frac{dv_0}{dt} \right)'$$

sont solution de (A.4) et (A.5) où l'on a remplacé $\sin v_0 \cos v_0$ par 1.

Calcul de la fonction de distribution

Considérons la classe de molécules ayant subi un choc entre t_0 et $t_0 + dt$ et dont la cage se trouve orientée entre les angles θ_0 et $\theta_0 + d\theta_0$ immédiatement après le choc. A un instant t donné, on peut calculer pour cette classe les grandeurs $v - v_0$ et dv_0/dt . Faisant de même pour toutes les classes caractérisées par le même θ_0 initial, mais des instants t_0 tels que $-\infty < t_0 < t$, on peut calculer les valeurs moyennes $\langle v - v_0 \rangle(t)$ et $\langle dv_0/dt \rangle(t)$ en pondérant chacun des résultats obtenus par les facteurs de population $e^{-(t-t_0)/\tau_c}$ correspondants.

Soit $n(v, t)$ le nombre de molécules dont l'axe est contenu à l'instant t dans l'angle solide $d\Omega = 2\pi \sin v dv$. On a $n(v, t) = f(v, t) \times 2\pi \sin v dv$, f étant la fonction de distribution des molécules. Il correspond à ces molécules un nombre égal de cages caractérisées par les grandeurs moyennes $v_0, dv_0, n_0(v_0, t)$ et $f_0(v_0, t)$ de sorte que :

$$(A.8) \quad f(v, t) 2\pi \sin v dv = f_0(v_0, t) 2\pi \sin v_0 dv_0$$

avec

$$dv = dv_0 + d\langle v - v_0 \rangle.$$

Le champ E crée une variation de la constante diélectrique [46-47] $\delta\epsilon = 4\pi N \Delta\alpha (\langle \cos^2 v \rangle - 1/3)$

où N est le nombre de molécules par unité de volume et où

$$\langle \cos^2 v \rangle - \frac{1}{3} = \frac{\int_0^\pi f(v, t) (\cos^2 v - 1/3) \sin v dv}{\int_0^\pi f(v, t) \sin v dv}$$

D'où, compte tenu de (A.6) et (A.8) :

$$(A.9) \quad \delta\epsilon = 4\pi N \Delta\alpha \frac{\int_0^\pi f_0(v_0, t) (\cos^2 v_0 - 1/3) \sin v_0 dv_0}{\int_0^\pi f_0(v_0, t) \sin v_0 dv_0}$$

$$- \langle (v - v_0)' \rangle \int_0^\pi \sin^3 v_0 \cos^2 v_0 dv_0$$

$$\delta\epsilon = \delta\epsilon_0 - \frac{4}{15} 4\pi N \Delta\alpha \langle (v - v_0)' \rangle$$

$\delta\epsilon_0$ est la contribution d'un ensemble de molécules alignées avec chacune des cages. Dans le modèle de Debye [47] la vitesse angulaire étant dv_0/dt , le couple exercé est

$$M = \zeta \frac{dv_0}{dt};$$

d'où un champ électrique fictif appliqué :

$$A(t) = \frac{1}{K} \left(\frac{\zeta}{\Delta\alpha} \langle \frac{dv_0'}{dt} \rangle \right)^{1/2}.$$

On peut donc intégrer $\delta\epsilon_0$ suivant :

$$(A.10) \quad \tau_K \frac{d}{dt} \delta\epsilon_0 = \epsilon'_2 A^2(t) - \delta\epsilon_0$$

où τ_K est le temps de relaxation diélectrique et

$$\epsilon'_2 = \frac{8\pi N \Delta \alpha^2 k^2}{45 k T} ;$$

k est la constante de Boltzmann et T la température.

Sur la figure A.2 sont représentées les variations de $\delta\epsilon/\epsilon_2 E_m^2$ sous l'excitation d'impulsions Gaussiennes de largeurs à mi-hauteur comprises entre 0,2 et 2 ps et d'amplitude maximale E_m . ϵ_2 est la susceptibilité diélectrique non-linéaire.

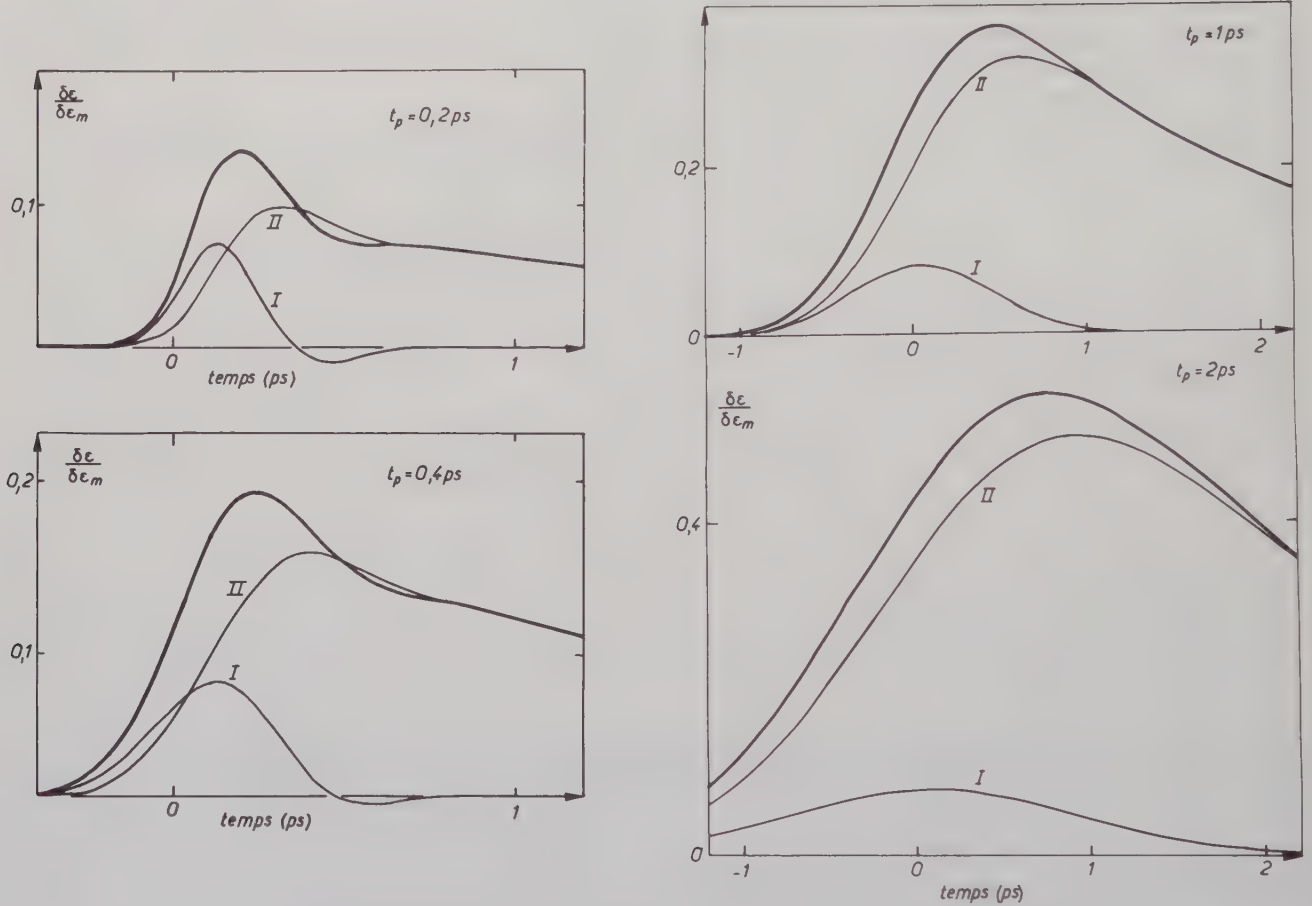


Fig. A.2 - Réponse non-linéaire de CS_2 sous l'action d'impulsions Gaussiennes de durées comprises entre 0,2 et 2 ps.

COURBES I - Contribution du rocking ;

COURBES II - Contribution de la diffusion orientationnelle.

Connaissant le moment d'inertie $I = 2,6 \cdot 10^{-38} \text{ g cm}^2$ des molécules, on tire des données de diffusion spontanée de Starunov [94] et Shapiro et Broida [95] $\mu = 0,3 \cdot 10^{-11} \text{ ues}$. Nous avons aussi $\epsilon_2 = 4,1 \cdot 10^{-11} \text{ ues}$ [72], $\xi = 0,5 \cdot 10^{-24}$ et $\tau_K = 2 \cdot 10^{-12} \text{ s}$ à $T = 293^\circ \text{K}$. Ces derniers paramètres sont repris de la théorie de l'effet Kerr classique [46] afin d'assurer une loi de décroissance exponentielle convenable après le passage de l'impulsion.

D'autre part, dans le cas d'une excitation constante $E(t) = E_m$, $\delta\epsilon$ doit être égal à $\epsilon_2 E_m^2$. Compte tenu du temps de vol τ_c , qui est pris égal à 0,4 ps d'après les considérations de Berne et coll [93], ceci est obtenu en majorant $\Delta\alpha$ de 11 %. Si l'on choisit un temps de vol de 2 ps, l'aspect qualitatif des courbes n'est pas changé (l'amplitude relative de I et II est conservée pour $T_p = 1 \text{ ps}$ et $T_p = 2 \text{ ps}$). En revanche, pour 0,2 ps, l'amortissement apparent supplémentaire introduit par la brièveté du temps de vol se fait moins sentir,

et le premier minimum de la courbe I est plus prononcé. Il en résulte que le $\delta\mathcal{E}_{\text{total}}$ présente un aspect oscillatoire.

On remarque que pour $T_p > 1$ ps, le terme de rocking contribue une fraction négligeable. Autrement dit, il ne saurait être la cause principale de trapping pour les impulsions de 4 ps données par le laser à rubis. Seules des impulsions de durée inférieure à la picoseconde rendent le terme de rocking prépondérant. Cette situation est le résultat de l'extrême brièveté du temps de relaxation τ_K .

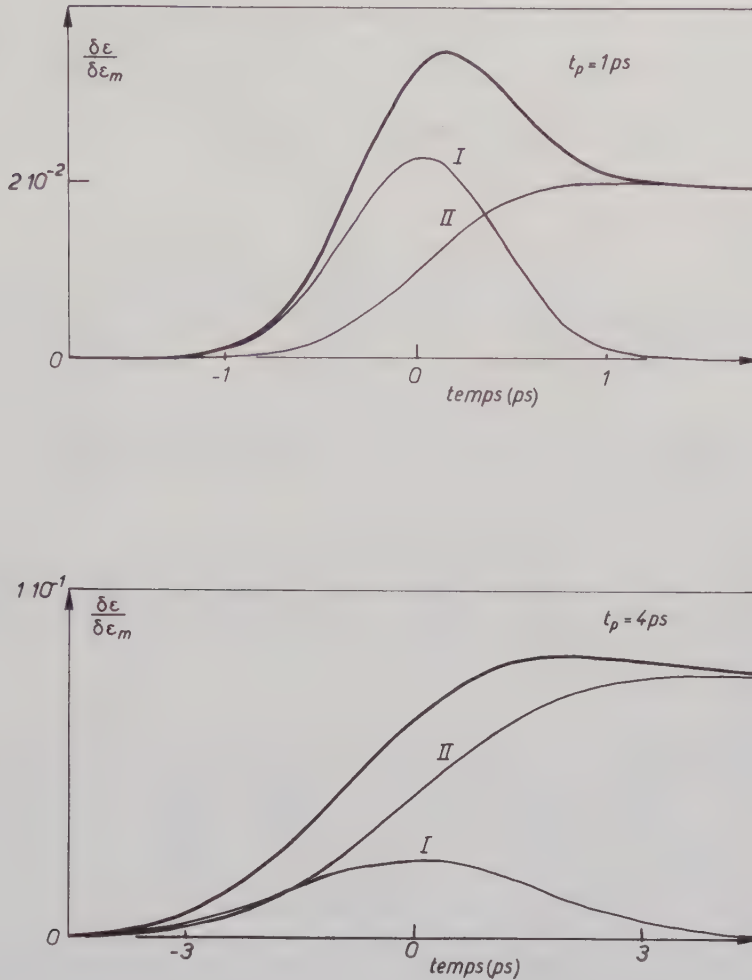


Fig. A.3 - Réponse du nitrobenzène pour des impulsions de 1 et 4 ps.

La situation est cependant différente dans le cas du nitrobenzène (fig. A.3) où, pour les impulsions de 4 ps qui sont les plus brèves observées, le rocking contribue environ 30 % du total. Nous avons ici $I = 6,8 \cdot 10^{-38}$, $\mu = 1,1 \cdot 10^{-11}$ [94], $\tau_K = 50$ ps, $\epsilon_2 = 2,66 \cdot 10^{-11}$ [72] ; τ_c est estimé égal à 0,6 ps.

En conclusion, le «rocking» ne saurait jouer un rôle prédominant que pour des impulsions de durée inférieure à celles couramment obtenues avec les lasers à modes couplés ordinaires. De telles impulsions sont cependant devenues possibles grâce aux techniques de compression [44,89] ; leur intérêt apparaît alors pour réaliser des expériences de portes optiques [72,96] qui permettent d'obtenir la réponse $\delta\mathcal{E}$, donc d'effectuer une mesure des grandeurs μ et τ_c .

Appendice B

B.1 - Méthode d'intégration des deux équations différentielles aux dérivées partielles (II.10) et (II.20)

Nous voulons esquisser la technique d'intégration utilisée pour résoudre ces deux équations couplées. Il est auparavant nécessaire de décomposer $\mathcal{E}$ dans (II.13) en amplitude et phase, puis de séparer les parties réelle et imaginaire. En effet, bien qu'en Fortran IV une équation complexe de type (II.10) puisse se programmer directement, on voit que lorsque la phase atteint des valeurs importantes, les fluctuations du vecteur complexe $\mathcal{E}$ en fonction du temps deviennent très rapides, ce qui interdit de prendre les dérivées par la méthode des différences finies. Finalement, (II.12a) se réécrit :

$$(B.1) \quad O^+ \varphi = \frac{1}{1 + (\delta \mathcal{E} / 4 \epsilon_0)} \left[\frac{\delta \mathcal{E}}{2 \epsilon_0} \left[\omega_0 + (\beta - 1) \frac{\partial \varphi}{\partial T} \right] + B \left[\left(\frac{\partial \varphi}{\partial T} \right)^2 - \frac{1}{\mathcal{A}} \frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial T^2} \right] \right]$$

$$(B.2) \quad O^+ \mathcal{A} = \frac{1}{1 + (\delta \mathcal{E} / 4 \epsilon_0)} \left[\frac{1}{2} (\beta - 1) \left(\mathcal{A} \frac{\partial}{\partial T} \frac{\delta \mathcal{E}}{\epsilon_0} + \frac{\delta \mathcal{E}}{\epsilon_0} \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial T} \right) - \frac{\mathcal{A}}{4} O^+ \frac{\delta \mathcal{E}}{\epsilon_0} + B \left(\mathcal{A} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial T^2} + 2 \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial T} \frac{\partial \varphi}{\partial T} \right) \right],$$

où O^+ est l'opérateur différentiel

$$\frac{\partial}{\partial Z} + \frac{\partial}{\partial T} = \sqrt{2} \frac{\partial}{\partial \xi},$$

avec

$$B = \frac{\gamma}{2 \omega_0}, \quad Z = \frac{\sqrt{\epsilon_0}}{c} z \quad \text{et} \quad T = \frac{t}{1 + \beta}.$$

On voit dans le plan (Z, T) l'évolution d'une impulsion donnée au cours de sa propagation (fig. B.1). Si l'on divise le chemin Z parcouru par l'impulsion dans le milieu en n tranches minces d'égale épaisseur H et de cotes $Z_1, Z_2, \dots, Z_n$, on a pour une fonction $F(Z, T)$ quelconque

$$O^+ F = \frac{F_{j+1}(\eta) - F_j(\eta)}{H},$$

où $H = Z_{j+1} - Z_j$ et η est le temps retardé $T - Z$ dans un repère lié à l'impulsion. Il apparaît clairement que si $O^+ \mathcal{E} = 0$, l'impulsion se propage indéfiniment sans distorsion.

Supposons $\mathcal{E}_j(\eta)$ et $\delta \mathcal{E}_j(\eta)$ connus pour une distance Z_j donnée. Il est alors possible de calculer $\mathcal{E}_{j+1}(\eta)$ et $\delta \mathcal{E}_{j+1}(\eta)$ de proche en proche pour tout T . Il suffit pour cela d'explicitier les différentes dérivées apparaissant dans les seconds membres de (B.1), (B.2) et (II.20). A cet effet, la décomposition du temps en m intervalles égaux H permet de les exprimer à l'aide des coefficients des formules de **Lagrange** [97] comme une combinaison linéaire des valeurs de la fonction en un petit nombre de points consécutifs.

La technique de Runge-Kutta permet de réduire l'erreur sur le calcul du « saut » $F(j, k) - F(j+1, k)$ d'une fonction F (fig. B.2) ; les variables Z, η sont ici remplacées par les indices j, k . Dans un premier temps, la dérivée $O^+ F$ est calculée au point (n, m) , ce qui donne une première estimation de $F(n+1, m)$:

$$F_1(n+1, m) = F(n, m) + H F_1$$

où

$$HF_1 = H \times O^+ F(n, m)$$

La deuxième approximation HF_2 de $O^+ F$ est à estimer à mi-chemin entre les points (n, m) et $(n+1, m)$.

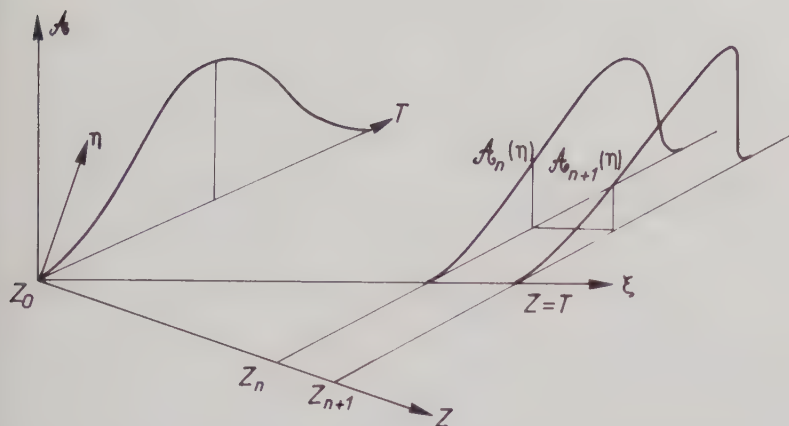


Fig. B.1 - Système d'axes caractéristiques dans le plan (z, t) relatifs à l'équation d'onde d'une impulsion optique.

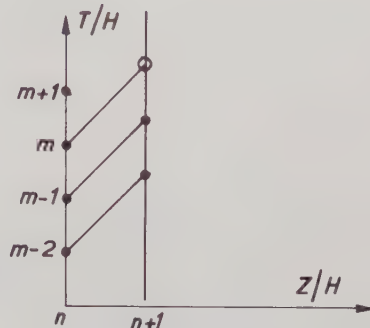


Fig. B.2 - Maille élémentaire pour l'intégration des équations relatives aux liquides de Kerr.

Connaissant $F_1(n+1, m)$, on peut calculer une première approximation des diverses fonctions et dérivées entrant dans le terme source. On fait alors la moyenne entre les points (n, m) et $(n+1, m)$ de ces fonctions et dérivées ; le terme source peut ensuite être calculé à l'aide de ces valeurs moyennes. D'où une nouvelle estimation $F_2(n+1, m)$. Ce processus est répété une fois de plus pour le point milieu, donnant $F_3(n+1, m)$ et HF_3 . Pour la dernière étape, la quantité HF_4 est calculée au point $(n+1, m)$. Le saut final HF est donné par la formule :

$$HF = \frac{1}{6} (HF_1 + HF_4 + 2(HF_2 + HF_3))$$

et la valeur définitive de $F(n+1, m)$ est

$$F(n+1, m) = F(n, m) + HF.$$

Notons que les différentes valeurs des fonctions étant inconnues pour les points $(n+1, j)$ avec $j \neq m$, seules les «différences vers l'avant» sont utilisables pour calculer les dérivées en $(n+1, m)$. Ceci pourrait conduire à des erreurs systématiques importantes et des instabilités pour des grandes distances de propagation. Il importe donc de prendre des différences vers l'arrière en (n, m) de façon à compenser en partie les erreurs. L'emploi de la double précision s'avère nécessaire afin d'améliorer la stabilité. L'intégration relative au temps de δE est conduite simultanément avec celle de δB et φ , et effectuée de façon analogue.

B.2 - Intégration des équations (IV.2) et (IV.11)

Les considérations précédentes se transposent ici (emploi des différences finies, technique de Runge-Kutta). Une simplification a été cependant apportée par la décomposition de E en e^F (F étant complexe) au lieu des classiques amplitude et phase. Par contre, la forme compliquée de (IV.2) a nécessité de modifier la forme du réseau de points ; enfin, les conditions aux limites de (IV.2) sont délicates.

L'équation (IV.11) a été programmée sous la forme :

$$(B.3) \quad O^+ F = \left(i\omega_0 \frac{\delta E}{E_0} - \frac{\partial}{\partial T} \left(\frac{\delta E}{E_0} \right) - \frac{\delta E}{E_0} \frac{\partial}{\partial T} F - \frac{1}{2} O^+ \frac{\delta E}{E_0} \right) / \left(2 + \frac{\delta E}{2E_0} \right)$$

où la dispersion a été éliminée.

(IV.2) se réécrit :

$$(B.4) \quad O^+ O^- E = \left(1 - \frac{\epsilon_s}{\epsilon_0}\right) \frac{\partial^2}{\partial T^2} E - \frac{2\pi}{\epsilon_0} \frac{\partial^2}{\partial T^2} e^{2\mathcal{R}_0(F)}$$

où $\mathcal{R}_0(F)$ désigne la partie réelle de F et $O^- = \frac{\partial}{\partial T} - \frac{\partial}{\partial Z} = \frac{\sqrt{2}\partial}{\partial \eta}$.

On voit sur la figure B.3 la maille élémentaire utilisée ; cette maille est plus particulièrement adaptée à l'intégration de (B.4). Ainsi $O^+ O^- E$ s'écrit en coordonnées I et J :

$$O^+ O^- E = E(I, J) - E(I, J-1) - [E(I-1, J) - E(I-1, J-1)]$$

Cette combinaison linéaire permet de calculer $E(I, J)$ connaissant les valeurs aux trois autres sommets du carré et les deux termes sources, qui sont estimés pour plus de précision au centre même du carré. L'intégration progresse, pour une valeur de J donnée, en faisant croître I entre les deux valeurs limites M et N correspondant aux intersections avec les limites du cristal (faces d'entrée et de sortie). On a d'ailleurs $(M-N)H = L$, H étant le pas et L la longueur optique du cristal.

Pour (B.3), la démarche est identique à celle du paragraphe précédent. Pour (B.3) comme pour (B.4), les dérivées figurant dans les seconds membres sont calculées par la méthode des différences finies. Enfin, la procédure de Runge-Kutta est appliquée afin d'améliorer la précision. Le cas échéant, un même problème est recalculé deux fois en choisissant deux pas doubles l'un de l'autre de façon à vérifier que l'on obtient bien le même résultat, et par conséquent que l'intégration est stable et précise.

Les conditions aux limites imposent que les champs rectifiés se propagent sans distorsion une fois sortis du cristal. Ceci impose des conditions du genre $E(M+1, J) = E(M, J)$ pour la face d'entrée et $E(N, J+1) = E(N, J)$ pour la face de sortie.

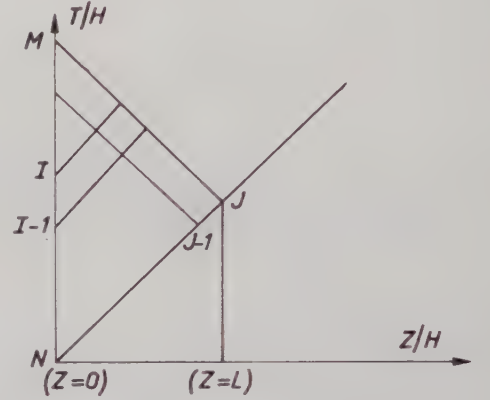


Fig. B.3 - Maille élémentaire pour l'intégration des équations relatives aux cristaux électrooptiques.

Appendice C

Nous avons établi que la rectification optique peut être cause de modulation de phase pour des impulsions brèves intenses. Une question intéressante est de savoir si un phénomène similaire se produit au cours de la génération du second harmonique. Aussi allons-nous ici reprendre des calculs parallèles à ceux que nous avons conduits pour la rectification mais en les simplifiant et en nous bornant à prédire le comportement général des champs électriques. Moyennant des précautions similaires concernant l'orientation cristalline, nous pourrions supposer le matériau isotrope. S'il est par ailleurs sans dispersion, ce que nous pourrions admettre pour le KDP où les vitesses de groupe sont sensiblement égales pour le fondamental et l'harmonique, nous écrirons l'équation d'onde du champ harmonique sous la forme :

$$(C.1) \quad \left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} - v_2^2 \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) E_{2\omega} = - \frac{4\pi \chi^{(2)}}{\epsilon_2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_{\omega}^2$$

où ϵ_2 est la constante diélectrique, E_{ω} étant donné par la relation (II.2), et $E_{2\omega}$ par :

$$(C.2) \quad E_{2\omega} = \frac{1}{2} \left[\mathcal{E}_2(z, t) e^{i(k_2 z - 2\omega t)} + c.c. \right]$$

k_2 étant le nombre d'onde $\left(k_2 = \frac{2\omega}{c} \sqrt{\epsilon_2} = \frac{2\omega}{v_2} \right)$ et $\mathcal{E}_2$ l'amplitude complexe à variations lentes devant ω_0 .

Enfin, nous avons posé :

$$\chi^{(2)} = \hat{e}_2 \chi^{(2)}(\omega, \omega) \hat{e}_1 \hat{e}_1 = \hat{e}_1 \chi^{(2)}(2\omega, -\omega) \hat{e}_2 \hat{e}_1,$$

$\hat{e}_1$ et $\hat{e}_2$ étant les vecteurs unitaires dans les directions de polarisation du champ fondamental et harmonique.

Faisant usage de nouvelles variables caractéristiques ξ', η' , telles que :

$$\xi' = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(t + \frac{z}{v_2} \right)$$

$$\eta' = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(t - \frac{z}{v_2} \right)$$

on peut, après quelques manipulations élémentaires, mettre l'équation (C.1) sous la forme :

$$(C.3) \quad (-4i\omega)\sqrt{2} \frac{\partial}{\partial \xi'} \mathcal{E}_2(\xi', \eta') = 8\pi \frac{\chi^{(2)} \omega^2}{\epsilon_2} \mathcal{E}_1^2(\xi', \eta') e^{-i\Delta k v_2 \frac{\sqrt{2}}{2} (\xi' - \eta')},$$

où seuls les termes d'ordre inférieur ont été conservés, dans l'hypothèse où l'interaction est faible et les champs varient lentement devant ω . En outre, Δk , qui caractérise l'inadaptation des vitesses de phase, est donné par :

$$\Delta k = k_2 - 2k_1.$$

L'onde de pompe obéit à l'équation générale (II.10), qui, à son ordre le plus bas, se ramène à :

$$(C.4) \quad \frac{\partial}{\partial \xi} \mathcal{E}_1(\xi, \eta) = \frac{i\sqrt{2}\pi\omega}{\epsilon_1} \chi^{(2)} \mathcal{E}_2(\xi, \eta) \mathcal{E}_1^*(\xi, \eta) e^{i\Delta k v_1 \frac{\sqrt{2}}{2} (\xi - \eta)}$$

les variables ξ, η étant données par les relations (III.4). Si Δk est petit, on peut définir $v_0 \approx v_1 \approx v_2$, $\epsilon_0 \approx \epsilon_1 \approx \epsilon_2$, et l'on a $\xi' \approx \xi, \eta' \approx \eta$; (C.3) se réécrit :

$$(C.5) \quad \frac{\partial}{\partial \xi} \epsilon_2(\xi, \eta) = \frac{i\pi\sqrt{2} \chi^{(2)} \omega}{\epsilon_0} \epsilon_1^2(\xi, \eta) e^{-i\Delta k v_0 \frac{\sqrt{2}}{2} (\xi - \eta)}.$$

Les équations couplées (C.4) et (C.5) sont les équations bien connues relatives à la génération du second harmonique ; voir par exemple **Armstrong, Bloembergen, Ducuing, Pershan** [38] (référence que nous dénoterons **ABDP**).

Dans le cas de « phase matching » parfait ($\Delta k = 0$), la solution est triviale en ce qui concerne la modulation de phase. En effet, si ϵ_1 est supposé réel initialement et $\epsilon_2(z=0) = 0$, ϵ_2 est imaginaire pur et sa réaction sur ϵ_1 donnée par (C.4) est réelle. ϵ_1 reste donc réel et tend vers zéro, jusqu'à ce que la conversion en harmonique soit complète. Rappelons qu'**ABDP** définissent une longueur d'interaction caractéristique

$$l = \left(\frac{2\omega \pi \chi^{(2)} \epsilon_0}{v_0} \right)^{-1}$$

(où ϵ_0 est la valeur maximale initiale de l'enveloppe au centre de l'impulsion), dont nous ferons usage dans ce qui suit ; sur cette distance, environ les trois quarts de l'énergie du fondamental sont convertis en harmonique.

Une discussion très complète sur la conversion réciproque de ϵ_1 et ϵ_2 pour $\Delta k = 0$ est effectuée par **ABDP** et ne sera pas reprise ici. En revanche, nous examinerons plus en détail que ne l'ont fait ces auteurs, la situation $\Delta k \neq 0$. Posons :

$$\epsilon_1(z, t) = A(z, t) e^{i\varphi_1(z, t)}$$

$$\epsilon_2(z, t) = B(z, t) e^{i\varphi_2(z, t)}$$

Il est possible d'écrire les équations relatives aux phases φ_1 et φ_2 en égalant les parties imaginaires de (C.4) et (C.5). Il vient :

$$(C.6) \quad \frac{\partial \varphi_1}{\partial \xi} = \frac{\sqrt{2} \pi \omega}{\epsilon_0} \chi^{(2)} B \cos \theta$$

$$(C.7) \quad \frac{\partial \varphi_2}{\partial \xi} = \frac{\sqrt{2} \pi \omega}{\epsilon_0} \chi^{(2)} \frac{A^2}{B} \cos \theta$$

où, suivant **ABDP**, on a posé :

$$\theta(\xi, \eta) = 2\varphi_1(\xi, \eta) - \varphi_2(\xi, \eta) - \frac{\Delta k v_0}{\sqrt{2}} (\xi - \eta).$$

On voit aisément que, par une combinaison linéaire appropriée de (C.6) et (C.7), on aboutit à :

$$(C.8) \quad \frac{\partial}{\partial \xi} \theta(\xi, \eta) = -\frac{\Delta k v_0}{\sqrt{2}} + \frac{\sqrt{2} \pi \omega \chi^{(2)}}{\epsilon_0} \left(2B - \frac{A^2}{B} \right) \cos \theta$$

qui est équivalente à l'équation (5.1c) d'**ABDP**. Prenant les parties réelles de (C.4) et (C.5), on aboutit à :

$$(C.9) \quad \frac{\partial}{\partial \xi} A(\xi, \eta) = \frac{\sqrt{2} \pi \omega}{\epsilon_0} \chi^{(2)} B(\xi, \eta) A(\xi, \eta) \sin \theta$$

$$\frac{\partial}{\partial \xi} B(\xi, \eta) = -\frac{\sqrt{2} \pi \omega}{\epsilon_0} \chi^{(2)} A^2(\xi, \eta) \sin \theta$$

qui correspondent aux équations (5.1a) et (5.1b) de ces mêmes auteurs. On peut donner une solution approchée dans la situation où la « phase mismatch » est importante. Définissant le paramètre $\Delta s = \Delta k \ell$, on vérifie que la solution générale suivante [107], valable pour $\Delta s \gtrsim 2$,

$$(C.11a) \quad B = \frac{1}{M(t-z/v_0)} \frac{\rho^2(t-z/v_0)}{A_0} \sin M(t-z/v_0) \frac{z}{\ell}$$

$$(C.11b) \quad \theta = -\frac{\pi}{2} - M(t-z/v_0) \frac{z}{\ell}$$

$$(C.11c) \quad \varphi_1 = -\frac{\rho^2(t-z/v_0)}{2M(t-z/v_0)A_0^2} \left[\frac{z}{\ell} - \frac{1}{2M(t-z/v_0)} \sin \frac{2z}{\ell} M(t-z/v_0) \right]$$

$$(C.11d) \quad \varphi_2 = \frac{\pi}{2} - \frac{\Delta k z}{2}$$

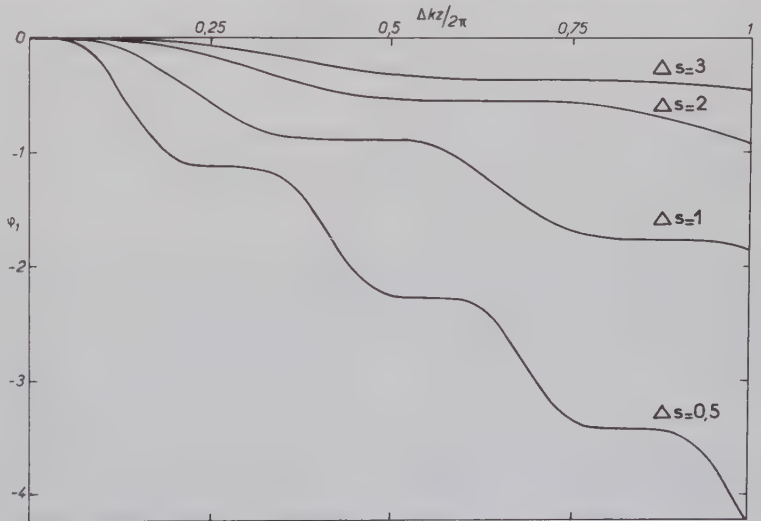
satisfait les équations différentielles. Nous avons défini $\rho(t-z/v_0)$, valeur qu'aurait le champ fondamental dans l'hypothèse d'une propagation en ondes libres ; enfin, le coefficient M est donné par

$$M(t-z/v_0) = \frac{\Delta s}{4} + \left(\frac{\rho^2(t-z/v_0)}{A_0^2} + \left(\frac{\Delta s}{2} \right)^2 \right)^{1/2}$$

Dans la limite $\Delta s \gg 1$ (C.11a) et (C.11b) correspondent aux équations (5.24a) d'ABDP.

Trois caractères importants de ces solutions se dégagent :

- a) La phase φ_1 ne demeure pas nulle : elle croît en gros linéairement avec la distance, mais le deuxième terme de (C.11c) imprime une ondulation périodique. Pour $\Delta k z < 1$, ce deuxième terme annule presque exactement le premier. Un tel comportement est prévisible car la situation est voisine du « phase matching » parfait. La valeur de la fonction φ_1 au centre d'une impulsion est représentée sur la figure C.1, pour diverses valeurs du paramètre Δs , en fonction de la distance parcourue. Ces solutions sont obtenues numériquement à partir des équations (C.3) et (C.4), en utilisant une routine semblable à celle exposée dans l'appendice B.2. La conséquence de cette modulation de phase est un élargissement spectral du fondamental analogue aux cas de l'effet Kerr et de la rectification.



- b) φ_2 est indépendant de l'intensité. Ceci est vérifié numériquement, même pour $\Delta s = 0,5$. On démontre que la solution (C.11d) satisfait l'équation

Fig. C.1 - Evolution de la phase du fondamental au centre de l'impulsion en fonction de la distance parcourue pour diverses valeurs du paramètre Δs .

différentielle du deuxième ordre obtenue par différentiation de (C.7) relativement à ξ , et substitution de toutes les dérivées premières en ξ des autres variables à l'aide des relations (C.6), et (C.8) à (C.10).

- c) Le caractère oscillant de B avec la distance, déjà décrit par **ABDP**, est compliqué du fait que sa période est fonction de l'intensité initiale du fondamental. C'est pourquoi, pour z fixé, B possède aussi un caractère oscillant avec le temps. Ceci ressort immédiatement de l'expression (C.11a). La période est inversement proportionnelle à z . La figure C.2 donne les valeurs de l'intensité et du spectre de l'harmonique 2 d'une impulsion de 2 GW/cm^2 de puissance crête et $0,8 \text{ ps}$ de durée dans un cristal de KDP avec $\chi^{(2)} = 3 \cdot 10^{-9} \text{ ues}$, $\lambda = 0,6943 \text{ \AA}$, $\sqrt{\epsilon_0} = 1,5$, $A_0 = 3 \cdot 10^3 \text{ ues}$ (d'où $l = 0,3 \text{ cm}$), pour diverses distances z et un paramètre $\Delta s = 0,5$.

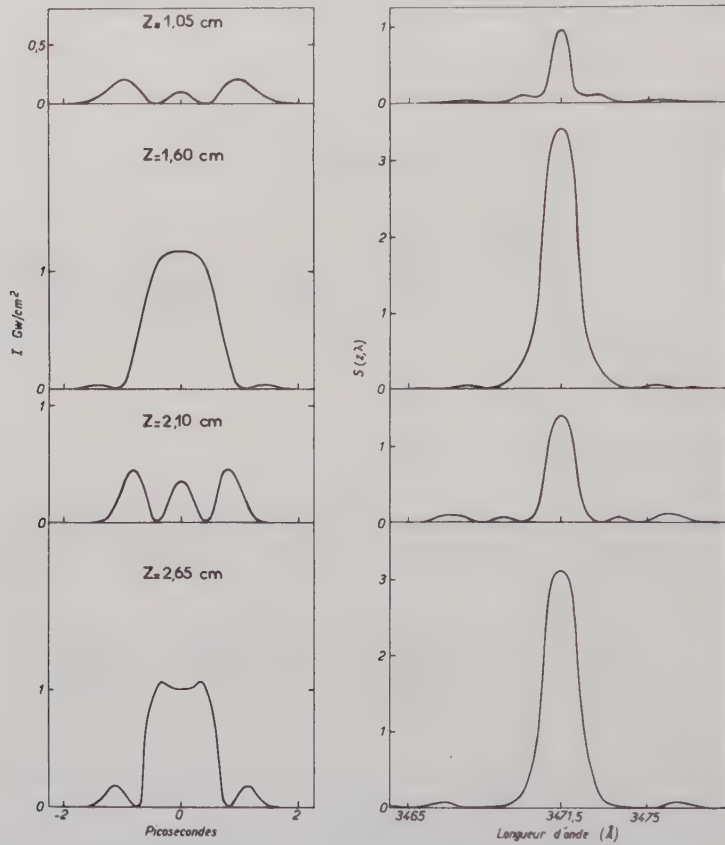


Fig. C.2 - Intensité et spectre de l'harmonique 2 créé dans un cristal de KDP par une impulsion de laser à rubis de $0,8 \text{ ps}$ et 2 GW/cm^2 en fonction de l'épaisseur pour $\Delta s = 0,5$.

Les oscillations dans le temps de B sont un facteur limitatif du rendement de conversion. On note enfin que des bandes latérales apparaissent dans le spectre ; ceci abaisserait également le rendement d'un cristal dispersif (LiNbO_3 par exemple).

Expérimentalement, ces bandes latérales seraient un moyen de mise en évidence de l'effet. La modulation d'amplitude dans le temps pourrait d'autre part être détectée avec des impulsions de laser monomode de plusieurs nanosecondes (de façon que la période d'oscillation de l'harmonique soit compatible avec la bande passante des détecteurs rapides).



RÉFÉRENCES

- [1] FRANKEN P.A., HILL A.E., PETERS C.W. and WEINREICH G. - Phys. Rev. Letters, 7, 118 (1961).
- [2] BASS M., FRANKEN P.A., WARD J.F. and WEINREICH G. - Phys. Rev. Letters, 9, 446 (1962).
- [3] WOODBURY E.J. and Ng W.K. - Proc. IRE, 50, 2367 (1962).
- [4] ECKHARDT G., HELLWARTH R.W., Mc CLUNG F.J., SCHWARZ S.E., WEINER D. and WOODBURY E.J. - Phys. Rev. Letters, 9, 455 (1962).
- [5] KROLL N.M. - Phys. Rev., 127, 1207 (1962).
- [6] CHIAO R.Y., TOWNES C.H. and STOICHEFF B. - Phys. Rev. Letters, 12, 592 (1964).
- [7] WANG C.C. and RACETTE G.W. - Applied Phys. Letters, 6, 169 (1965).
- [8] MAKER P.D., TERHUNE R.W. and SAVAGE C.M. - Proc. Third Conference on Quantum Electronics, Paris 1963 ; ed. P. GRIVET and N. BLOEMBERGEN, Columbia University Press, New York, 1964, p. 1449.
- [9] KAISER W. and GARRETT C.G.B. - Phys. Rev. Letters, 7, 229 (1961).
- [10] GIRES F. et MAYER G. - C.R. AC. Sc. t. 258 (1964), 2039.
- [11] voir par exemple : BLOEMBERGEN N. - *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
- [12] KROLL N.M. - J. Appl. Phys., 36, 34 (1965).
- [13] SHAPIRO S.L., GIORDMAINE J.A. and WECHT K.W. - Phys. Rev. Letters, 19, 1093 (1967).
- [14] VAN DER LINDE D., MAIER M. and KAISER W. - Phys. Rev., 178, 11 (1969).
- [15] BRET G. and WEBER H.P. - IEEE J. Quantum Electron., 4, 807 (1968).
- [16] RAHN O., MAIER M. and KAISER W. - Opt. Commun., 1, 109 (1969).
- [17] COLLES M.J. - Opt. Commun., 1, 169 (1969).
- [18] CARMAN R.L., MACK M.E., SHIMIZU F. and BLOEMBERGEN N. - Phys. Rev. Letters, 23, 1327 (1969).
- [19] MACK M.E., CARMAN R.L., REINTJES J. and BLOEMBERGEN N. - Appl. Phys. Letters, 16, 209 (1970).
- [20] Citons, parmi de nombreux auteurs : JAVAN A. and SZOKE A. - Phys. Rev., 137, A 536 (1965) ;
SCHLOSSBERG H.R. and JAVAN A. - Phys. Rev., 150, 267 (1966)
De MARTINI F. - Nuovo Cimento, 51, 16 (1967).
De MARTINI F., DUCUING J. and HAUCHECORNE G. Proc. of the Quantum
electronics Conference, Miami, Florida (1968), (unpublished), paper 19 S 5.
- [21] HERMAN R.M. - Phys. Rev., 164, 200 (1967).
- [22] De MARTINI F., TOWNES C.H., GUSTAFSON T.K. and KELLEY P.L. - Phys. Rev., 137, A 536 (1965) ; '67).
- [23] BLOEMBERGEN N. and LALLEMAND P. - Phys. Rev. Letters, 16, 81 (1966).
- [24] LALLEMAND P. - Appl. Phys. Letters, 8, 276 (1966).
- [25] SHIMODA K. - J. Appl. Phys. (Japan), 5, 615 (1969).
- [26] STOICHEFF B.P. - *Quantum Electronics and Coherent Light*, edited by C.H. TOWNES and P.A. MILES (Academic Press Inc., New York, 1964), p. 306.
- [27] GRIENEISEN H.P.H. and SACCHI C.A. - Bull. Am. Phys. Soc., 12, 686 (1967).
- [28] BREWER R.G. - Phys. Rev. Letters, 19, 8 (1967).
- [29] SHIMIZU F. - Phys. Rev. Letters, 19, 1097 (1967).

- [30] CHEUNG A.C., RANK, D.M., CHIAO R.Y. and TOWNES C.H. - Phys. Rev. Letters 20, 786 (1968).
- [31] BREWER R.G., LIFSITZ J.R., GARMIRE E., CHIAO R.Y. and TOWNES C.H. - Phys. Rev., 166, 326 (1968).
- [32] GIORDMAINE J.A. and MILLER R.C. - Appl. Phys. Letters 9, 298 (1966).
- [33] KAMINOW I.P. and LIU J. - Proc. IEEE, 51, 132 (1963) ; PETERS C.J., proc. IEEE, 51, 147 (1963).
- [34] NIEBUHR K.E. - Appl. Phys. Letters, 2, 136 (1963).
- [35] FARIES D.W., GEHRING K.A., RICHARDS P.L. and SHEN Y.R. - Phys. Rev., 180, 363 (1969).
- [36] MAKER P.D., TERHUNE R.W., NISENOFF M. and SAVAGE C.M. - Phys. Rev. Letters, 8, 21 (1962) .
- [37] GIORDMAINE J.A. - Phys. Rev. Letters, 8, 19 (1962).
- [38] ARMSTRONG J.A., BLOEMBERGEN N., DUCUING J. and PERHAN P.S. - Phys. Rev., 127, 1918 (1962).
- [39] BUTCHER P.N. - *Nonlinear optical phenomena* (Ohio State University Engineering Publications, Columbus, Ohio).
- [40] KELLEY P.L. - Phys. Rev. Letters, 15, 1005 (1965).
- [41] CHIAO R.Y., GARMIRE E. and TOWNES C.H. - Phys. Rev. Letters, 13, 479 (1964) ;
TALANOV V.I. - Izv Vusov, Radiofizika, 7, 564 (1964).
- [42] DENARIEZ-ROBERGE M.M. and TARAN J.P.E. - Appl. Phys. Letters, 14, 205 (1969).
- [43] DUCUING J. and FLYTZANIS C. - *Optical properties of Solids*, edited by F. ABELES.
- [44] TREACY E.B. - Phys. Letters 28A, 34 (1968).
- [45] FISHER R.A., KELLEY P.L. and GUSTAFSON T.K. - Appl. Phys. Letters, 14, 140 (1969).
- [46] FRENKEL J. - *Kinetic Theory of Liquids*, (Oxford University Press, Amen House, London, 1947).
- [47] DEBYE P. - *Polar molecules* (Dover Publications Inc., New York, 1945), chap. 5.
- [48] Mc LEAN A.D. and YOSHIMINE M. - J. Chem. Phys., 46, 3682 (1964).
- [49] BREWER R.G. and LEE C.H. - Phys. Rev. Letters, 21, 267 (1968).
- [50] ALFANO R.R. and SHAPIRO S.L. - Phys. Rev. Letters, 24, 592 (1970).
- [51] POLLONI R., SACCHI C.A. and SVELTO O. - Phys. Rev. Letters 23, 690 (1969).
- [52] TANG T.Y., VAN TRAM N. and PATEL C.K.N. - Appl. Phys. Letters, 13, 357 (1968).
- [53] KELLEY P.L., GUSTAFSON T.K., WHINNERY J.R., LIN C.H., KOHANZADEH Y. DAEBY F.W., CHIAO R.Y. and
TARAN J.P.E. - Proc. of the International Quantum Electronics Conference, Kyoto, 1970 (unpublished), paper 15-1.
- [54] LANDAUER R. - IBM J. Res. Dev. 4, 391 (1969).
- [55] GUSTAFSON T.K., TARAN J.P., HAUS H.A., LIFSITZ J.R. and KELLEY P.L. - Phys. Rev., 177, 306 (1969).
- [56] BREWER R.G. and LIFSITZ J.R. - Phys. Letters, 23, 79 (1966).
- [57] GUSTAFSON T.K., KELLEY P.L., CHIAO R.Y. and BREWER R.G. - Appl. Phys. Letters, 12, 165 (1968).
- [58] FLECK Jr J.A. and KELLEY P.L. - Appl. Phys. Letters, 15, 313 (1969).
- [59] LUGOVOI V.N. - Dokl. Akad. Nauk SSSR, 176, 58 (1967). English trans. Sov. Phys.-Doklady, 12, 866 (1968).
- [60] DYSHKO A.L., LUGOVOI V.N. and PROKHOROV A.M. - ZhETF Pis'ma, 6, 655 (1967). English trans. JETP Letters,
6, 146 (1967).
- [61] LUGOVOI V.N. and PROKHOROV A.M. - ZhETF Pis'ma, 7, 153 (1968). English trans. JETP Letters, 7, 117 (1968).
- [62] MARBURGER J.H. and DAWES E.L. - Phys. Rev. Letters, 21, 556 (1968).
DAWES E.L. and MARBURGER J.H. - Phys. Rev., 179, 862 (1969).
- [63] SHIMIZU F. and STOICHEFF B. - IEEE J. Quant. Electronics, QE-5, 544 (1969).

- [64] CHIAO R.Y., JOHNSON M.A., KRINSKY J., SMITH H.A., TOWNES C.H. and GARMIRE E. - IEEE J. Quant. Electronics, QE-2, 467 (1966).
- [65] AKHMANOV S.A., SUKHORUKOV A.P. and KHOKHLOV R.V. - Zh. Eksp. Teor. Fiz, 50, 1537 (1966). English trans. Sov. Phys. JETP, 23, 1025 (1966).
- [66] LOY M.M.T. and SHEN Y.R. - Phys. Rev. Letters, 22, 994 (1969).
- [67] KOROBKIN V.V., PROKHOROV A.M., SEROV R.V. and SHCHELEV M. Ya. - ZhETF Pis. Red., 11, 153 (1970) - JETP Letters 11, 94 (1970).
- [68] ZVEREV G.M. and PASHKOV V.A. - Zh. Eksp. Teor. Fiz. 57, 1128 (1969). Sov.Phys.JETP, 30, 616 (1970).
- [69] MANENKOV A.A. - Communication privée - voir aussi :
LIPATOV N.I., MANENKOV A.A. et PROKHOROV A.M., ZhETF Pis. Red., 11, 444 (1970).
- [70] LOY M.M.T. and SHEN Y.R. - Phys. Rev. Letters, 25, 1333 (1970).
- [71] SHEN Y.R., AU YANG M.Y. and COHEN M.L. - Phys. Rev. Letters, 19, 1171 (1967).
- [72] PAILLETTE M. - Comptes Rendus 262B, 264 (1966).
- [73] MARBURGER J., HUFF L., REICHERT J.D. and WAGNER W.G. - Phys. Rev., 184, 255 (1969).
- [74] MACK M.E. - Communication privée - voir aussi :
MACK M.E. - IEEE, J. Quantum Electronics QE-4, 1015 (1968) et :
De MARIA A.J., GLENN W.H., BRIENZA M.J. and MACK M.E. - IEEE Proceedings, 57, 2 (1969).
- [75] HAUS H.A. - Appl. Phys. Letters, 8, 128 (1966).
- [76] Cette erreur s'introduit parce que la fenêtre de sortie n'est pas diffusante ; la lumière des filaments n'est donc pas diffractée dans tout l'espace, mais seulement dans un angle solide d'ouverture $\simeq \frac{\lambda}{d}$.
Le faisceau ne couvre pas totalement la lentille ; de la sorte, la résolution maximale $(\frac{\lambda}{\theta})$ (θ ouverture numérique) n'est jamais atteinte. La tache de diffraction possède un diamètre égal à Gd , où G est le grandissement linéaire. L'image résultante, produit de convolution de l'image géométrique par la tache de diffraction, a donc un diamètre égal à $\sqrt{2} Gd$ et non pas Gd .
- [77] FOLTZ N.D., CHO V.W., RANK D.H. and WIGGINS T.A. - Phys. Rev., 165, 396 (1968) ; voir aussi :
RANK D.H. - J. Opt. Soc. Amer. 60, 443 (1970).
- [78] MARBURGER J.H. and WAGNER W.G. - IEEE. J. Quant. Electronics QE-3, 415 (1967).
- [79] DENARIEZ-M.M. and BRET G. - Phys. Rev, 172, 160 (1968).
KROLL N.M. and KELLEY P.L. Phys. Rev. 4A, 763 (1971).
- [80] MARBURGER J.H. and JOHNSON R.V. - *Relaxation oscillations in stimulated Raman scattering*. (non publié).
- [81] MAIER M., WENDL G. and KAISER W. - Phys. Rev. Letters, 24, 352 (1970).
- [82] HELLWARTH R.W. - Phys. Rev., 152, 156 (1966).
- [83] Mc TAGUE J.P., LIN C.H., GUSTAFSON T.K. and CHIAO R.Y. - Phys. Letters, 32A, 82 (1970).
ALFANO R.R. and SHAPIRO S.L. - Bull. Am. Phys. Soc., 15, 507 (1970), Phys. Rev. Letters, 24, 1217 (1970).
- [84] SHAPIRO S.L. and BROIDA H.P. - Phys. Rev., 154, 129 (1967), voir p. 134.
- [85] SHIMIZU F. - Communication privée.
- [86] TARAN J.P. and GUSTAFSON T.K. - IEEE J. Quantum Electronics QE-5, 381 (1969).
- [87] COURTENS E. - Phys. Letters 33A, 423 (1970).
- [88] FLYTZANIS C. - *Contribution à la théorie des susceptibilités non linéaires dans les solides*. Thèse, Faculté des Sciences d'Orsay, Université de Paris (1970).
- [89] LAUBEREAU A. - Phys. Letters, 29 A, 539 (1969).
- [90] REZ I.S. - Sov. Phys. Uspekhi 10, 759 (1968).
- [91] YARIV A. - *Quantum Electronics*, J. Wiley and Sons Inc., New York, London, Sydney.

- [92] RAHMAN A. - Phys. Rev. Letters, 136, A405 (1964).
- [93] Cette hypothèse est aussi discutable. Voir notamment [49] et :
BERNE B.J., BOON J.P. and RICE S.A. - J. Chem. Phys., 45, 1086 (1966) ;
LARSSON K.E. - Phys. Rev., 167, 171 (1968) ;
MARTIN P.C. and YIP S. - Phys. Rev., 170, 151 (1968),
et les références données par ces divers articles. Cependant, la décroissance moins rapide que l'exponentielle qui est prédite dans [49], et qui amènerait à peser davantage les « jeunes » molécules, n'entraînerait un changement que de quelques pourcents sur le résultat final.
- [94] STARUNOV V.S. - Opt. i Spectroskopia, 18, 300 (1965) (Opt. Spectry. (USSR), 18, 165 (1965)).
- [95] SHAPIRO S.L. and BROIDA H.P. - Phys. Rev., 166, 326 (1968).
- [96] DUGUAY M.A. and HANSEN J.W. - Applied Phys. Letters, 15, 192 (1969).
- [97] BICKLEY W.G. - *Formulae for numerical differentiation*, Math. Gazette, 25, 19, (1941).
- [98] ROSEN G. - Phys. Rev., 139, A 539 (1969).
- [99] JOENK R.J. and LANDAUER R. - Phys. Letters, 24, 228 (1967).
- [100] LANDAUER R. - J. Appl. Phys., 31, 479 (1960) ; IBM J. Res. Develop. 4, 391 (1960).
- [101] KATAYEV I.G. - *Electromagnetic shock waves* (en anglais : Iliffe Books Ltd, London, 1966).
- [102] SALINGER - Arch. Elektrotech. 12, 268 (1963).
- [103] Voir par exemple :
COURANT R. and FRIEDRICHS K.O. - *Supersonic flow and shock waves*, Interscience Publishers, Inc., New York, 1948.
- [104] IKUTA K. and TANIUTI T. - Nagoya University Research Report No. IPPJ-31, 1964 (unpublished).
- [105] BROER L.J.F. and SARLUY P.H.A. - Physica, 30, 1421 (1964),
BROER L.J.F. - Angew. Z. Math. Phys., 16, 18 (1965) - Appl. Sci. Res. Sect. B 11, 273 (1965) ; 12, 113 (1965).
- [106] GUSTAFSON T.K., TARAN J.P.E., KELLEY P.L. and CHIAO R.Y. - Optics Com. 2, 17 (1970).
- [107] THOMAS J.M. et TARAN J.P.E. - *Pulse distortions in mismatched second harmonic generation*, (à paraître).



